



**Modélisation du comportement mécanique
"post-trempe", après oxydation à haute température,
des gaines de combustible des réacteurs à eau pressurisée**

Andrea Cabrera Salcedo

► **To cite this version:**

Andrea Cabrera Salcedo. Modélisation du comportement mécanique "post-trempe", après oxydation à haute température, des gaines de combustible des réacteurs à eau pressurisée. Autre. Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris, 2012. Français. NNT : 2012ENMP0009 . pastel-00705085

HAL Id: pastel-00705085

<https://pastel.archives-ouvertes.fr/pastel-00705085>

Submitted on 6 Jun 2012

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

École doctorale n° 432 : Sciences et Métiers de l'Ingénieur

Doctorat ParisTech

T H È S E

pour obtenir le grade de docteur délivré par

l'École nationale supérieure des mines de Paris

Spécialité “ Sciences et Génie des Matériaux ”

présentée et soutenue publiquement par

Andrea CABRERA SALCEDO

le 14 février 2012

**Modélisation du comportement mécanique "post-trempe", après oxydation
à haute température des gaines de combustible des réacteurs à eau
pressurisée**

Directeur de thèse : **Jacques BESSON**

Co-encadrement de la thèse : **Valérie VANDENBERGHE**

Jury

M. Frank MONTHEILLET, Directeur de recherche au CNRS , SMS, ENSMSE

M. Sylvain LECLERCQ, Docteur HDR, EDF R&D

Mme Valérie VANDENBERGHE, Docteur, SRMA, CEA

M. Jacques BESSON, Directeur de recherche au CNRS, MAT, Mines ParisTech

Mme Veronique AUBIN, Professeur, MSSMat, ECP

M. Philippe PILVIN, Professeur, LIMATB, Université de Bretagne-Sud

M. Jean Paul MARDON, Docteur, AREVA NP

Mme Biya SEBBARI, EDF SEPTEN

Rapporteur
Rapporteur
Examineur
Examineur
Examineur
Examineur
Invité
Invité

**T
H
È
S
E**

*A Matthieu,
a mis padres
... y a mi abuelo.*

Avant-propos

Je tiens tout d'abord à remercier les membres de mon jury de thèse pour le temps qu'ils ont consacré à ce travail. Je remercie particulièrement Philippe Pilvin pour avoir présidé le jury, ainsi que Frank Montheillet et Sylvain Leclerc pour le travail de relecture minutieuse qu'ils ont mené.

Cette étude a été réalisée au Laboratoire du Comportement Mécanique des Matériaux (LC2M) du Service de Recherche en Métallurgie Appliquée (SRMA) du Commissariat à l'Energie Atomique (CEA), dans le cadre d'un projet tripartite CEA – EDF – AREVA. Je remercie Laurence Portier, chef du laboratoire qui m'a accueilli, car ses remarques et suggestions ont contribué à améliorer en permanence la qualité de ce travail. Je remercie également les correspondants des partenaires industriels Jean Paul Mardon d'AREVA NP et Biya Sebbari d'EDF SEPTEN, qui ont soutenu cette étude et s'y sont intéressés tout au long des trois années de thèse.

J'exprime toute ma reconnaissance à Jacques Besson, mon directeur de thèse, pour ses éclairages précieux, pour sa disponibilité, et pour sa conviction. Je remercie sincèrement Valérie Vandenberghe, qui a su m'encadrer efficacement tout en me laissant une grande autonomie, et qui m'a toujours apporté des conseils opportuns. Je tiens à remercier Jean Christophe Brachet et Matthieu Le Saux, qui ont également participé à mon encadrement, pour leur disponibilité et pour les nombreux échanges qui ont beaucoup apporté à cette thèse.

Cette thèse est le fruit du travail de nombreuses personnes que j'ai rencontré pendant trois ans... Je remercie Stéphane Urvoy, Elodie Rouesne et Didier Hamon pour avoir contribué à la préparation de mes échantillons, toujours avec un grand sourire. Je remercie à Annik Bougault de m'avoir permis d'utiliser le MEB. Je remercie également Séverine Paradowski et Jean Luc Flament pour leur gentillesse et pour leur aide technique avec les essais mécaniques. Je remercie aussi « les filles du sous-sol » : Céline Cobac pour sa gentillesse et son soutien dans les moments difficiles, et Marine Jesson pour le travail qu'elle a fourni avec son stage qui s'est avéré essentiel pour cette thèse. Je remercie aussi Jean Luc Béchade pour sa disponibilité, mais surtout pour sa foi en la diffraction de neutrons, qui nous a amené à réaliser des expériences avec Vincent Klosek, que je remercie pour le temps qu'il y a consacré. Je remercie Dominique Gosset pour nos expériences de RX. Je remercie aussi Anne Laurent du Centre de Matériaux de l'Ecole des Mines de Paris, pour avoir passé avec moi je ne sais plus combien de jours à faire de belles photos de mes échantillons au MEB. Je remercie Pierre Forget pour son aide avec la nanoindentation, et pour ses conseils CAST3M. Je remercie également les personnes qui ont été là pour me faire sourire et qui ont toujours su me donner un conseil autour d'un café : Christel Caës, Véronique Lezaud, Lucien Allais et Gwenael Trego... Je ne sais pas si j'en oublie d'autres, mais plus généralement, je remercie toutes les personnes que j'ai croisées et qui m'ont réservé un accueil chaleureux.

Enfin, je voudrais remercier mes proches pour leur soutien inconditionnel, spécialement ma mère qui est toujours restée à l'écoute, et mon mari Matthieu qui a fait preuve de patience, et qui a toujours réussi à me faire décompresser quand il le fallait.

Table des matières

Chapitre 1 : Introduction et contexte	11
1.1. La gaine en alliage de zirconium au sein du réacteur	13
1.2. Le scénario APRP	14
1.3. Les critères de sûreté pour l'APRP	15
1.4. Objectifs et démarche de l'étude.....	15
Chapitre 2 : Revue bibliographique et caractérisations complémentaires des propriétés métallurgiques et mécaniques du Zy-4	19
2.1. Le Zircaloy-4 : un alliage base zirconium pour le gainage	21
2.2. La transformation de phase $\beta \rightarrow \alpha$ au refroidissement.....	21
2.2.1. La relation de Burgers.....	22
2.2.2. La microstructure après la transformation $\beta \rightarrow \alpha$	23
2.3. Corrosion de la gaine au sein du réacteur.....	25
2.3.1. Conditions nominales de fonctionnement : oxydation et hydruration de la gaine.....	25
2.3.2. APRP : oxydation à haute température et trempe de la gaine.....	25
2.4. La gaine après oxydation à haute température et trempe : caractérisation du matériau stratifié	28
2.4.1. Obtention des échantillons oxydés en conditions APRP	28
2.4.2. Caractérisation de la gaine stratifiée post-oxydation et trempe.....	32
2.4.2.1. Profil de module d'Young de la gaine oxydée	32
2.4.2.2. Propriétés de la couche interne ex- β de la gaine oxydée	34
2.4.2.3. Comportement mécanique de la phase ex- β chargée en oxygène et en hydrogène	39
2.4.2.4. Propriétés de la couche α (O)	39
2.4.2.5. Propriétés de la zircone	42
2.4.3. Etat de contraintes de la gaine stratifiée après trempe	46
2.5. Conclusion : Etat de la gaine oxydée et trempée en conditions APRP.....	49
Chapitre 3 : Analyse fine des essais de compression d'anneaux	51
3.1. L'essai de compression d'anneaux	53
3.2. Caractérisation du comportement mécanique post-oxydation et trempe des gaines par essai de compression d'anneaux	53
3.2.1. Zy-4 oxydé à 1100°C pendant 467s (ECR=6%)	54
3.2.2. Zy-4 oxydé à 1100°C pendant 1349s (ECR=10%)	58
3.2.3. Zy-4 oxydé à 1200°C pendant 520s (ECR=10%)	60
3.2.4. Zy-4 oxydé à 1200°C pendant 1492s (ECR=17%)	61
3.2.5. Endommagement de la zircone au point d'appui avec les plateaux en début d'essai	63
3.2.6. Fractographies post-essai de compression d'anneaux sur gaine oxydée HT et trempée	65
3.2.7. Bilan des essais de compression d'anneaux	69
3.3. Essais de compression d'anneaux sur gaine sablée	70

3.4. Conclusion : Bilan expérimental de l'endommagement de la gaine sollicitée par essai de compression d'anneaux.....	73
Chapitre 4 : Modèle de comportement proposé et simulations par éléments finis de l'essai de compression d'anneaux	75
4.1. Revue bibliographique sur la simulation de l'essai de compression d'anneaux	77
4.2. Aspects généraux du modèle	78
4.2.1. Hypothèses de calcul	79
4.2.2. Maillage et conditions aux limites	79
4.2.3. Prise en compte de la complaisance du dispositif d'essai	80
4.3. Modélisation du comportement de la gaine oxydée et testée par RCT	81
4.3.1. Détermination de la loi de comportement de la couche ex- β	81
4.3.2. Modélisation de la couche de phase $\alpha(O)$ pré-endommagée	85
4.3.3. La couche externe de zircone	88
4.4. Scénario de rupture de la gaine oxydée et trempée en conditions APRP et testée par RCT	88
4.5. Critère de rupture préliminaire pour la gaine oxydée et trempée en conditions APRP	94
4.6. Simulation préliminaire d'un RCT sur gaine oxydée et hydrurée.....	96
4.7. Conclusion : Scénario de rupture de la gaine	99
Conclusion générale et perspectives	101
Bibliographie	105
Annexes.....	111

Index des illustrations

Figure 1 : Représentation schématique du fonctionnement d'un REP (ALMAGESTE, 2006).....	13
Figure 2 : Assemblage et crayon combustible (INPL-LYON, 2009).	13
Figure 3 : Schéma en temps-température du transitoire subi par les gaines en alliage de zirconium dans le cadre d'un APRP. Les domaines où un éclatement local de la gaine est possible sont signalés avec une étoile (VANDENBERGHE, 2011).	14
Figure 4 : Reproductibilité des courbes de force déplacement des essais de compression d'anneaux sur des gaines en Zy-4 oxydées en simple face à 1100°C à différents taux d'oxydation, et trempées à l'eau.	16
Figure 5 : Maille prismatique à partir du réseau cubique (BURGERS, 1934).	22
Figure 6 : Formation de la maille hexagonale (BURGERS, 1934).	23
Figure 7 : Morphologie type de la microstructure du Zircaloy-4 refroidi à des vitesses faibles (CHAUVEY, 2004).	24
Figure 8 : Schéma simplifié de la transformation $\beta \rightarrow \alpha$ avec germination sur les joints de grains β . D'après CREPIN et al, 1995.	24
Figure 9 : Mobilité des espèces oxydantes pour une oxydation en milieu eau (BUSSE (2009) d'après PARISE (1996))	25
Figure 10 : Diagramme binaire Zr-O a pression atmosphérique (ABRIATA et al., 1986).	26
Figure 11 : Profil de concentration en oxygène typique dans la gaine après oxydation HT et trempe.	26
Figure 12 : Cinétiques d'oxydation pour le Zy-4 vierge oxydé à 1000, 1100 et 1200°C (PORTIER et al., 2005).	27
Figure 13 : Représentation schématique de la gaine post oxydation trempe, illustration par cartographie de l'oxygène obtenue par microsonde électronique (BRACHET et al., 2001).	28
Figure 14 : Image MEB en électrons rétrodiffusés, d'une gaine en Zircaloy-4 oxydée 520s à 1200°C, soit un ECR visé de 10%.	29
Figure 15 : Microstructures des 4 cas d'oxydation (Zy-4) observées en microscopie optique, en lumière polarisée.	30
Figure 16 : Profils d'oxygène obtenus par microsonde de Castaing sur des gaines en Zy-4 oxydées selon différentes conditions (MA et al., 2008).	31
Figure 17 : Représentation schématique du mécanisme d'apparition et d'épaississement des incursions de phase $\alpha(O)$ au sein du liseré ex- β du Zy-4 (BRACHET et al., 2007).	31
Figure 18 : Diagramme pseudo-binaire Zy-4 – O de Chung et Kassner (1979).	32
Figure 19 : Evolution du Module d'Young des gaines en Zy-4 chargées en oxygène à différentes teneurs pour une plage de température allant de 20 à 1200°C, selon le sens de prélèvement de l'éprouvette (BUNNELL et al., 1977).	32
Figure 20 : Profil de module d'Young obtenu par nanoindentation instrumentée (paliers de force du cycle à 3 mN, 5 mN et 8 mN) sur gaine oxydée 3125s à 1100°C et 1492s à 1200°C (17% ECR).	33
Figure 21 : Profil de module d'Young obtenu par nanoindentation instrumentée (paliers de force du cycle à 30, 50 et 80 mN) le long de l'épaisseur d'une gaine oxydée 520s à 1200°C (10% ECR), comparé aux données de la littérature (BUNNELL et al., 1977).	34
Figure 22 : Image MEB (électrons rétrodiffusés) d'une coupe polie d'une gaine en Zircaloy-4 oxydée 520s à 1200°C, soit un ECR de 10%. Teneur moyenne en O de la couche ex- β de ~0,4% mass. O.	35
Figure 23 : Domaines d'application (concentration en oxygène et température d'essai) des lois de comportement élastique-fragile et élasto-plastique de la phase ex- β (STERN, 2007).	35

Figure 24 : Evolution du mécanisme de rupture à température ambiante en fonction de la teneur locale en oxygène, pour la couche ex-β des gaines en Zy-4 oxydées et trempées à l'eau à température ambiante.	37
Figure 25 : Figures de pôles obtenues par diffraction de neutrons sur la couche ex-β de deux gaines oxydées en conditions APRP (la direction axiale de la gaine correspond au centre de la figure de pôles).	38
Figure 26 : Fractographies des faciès de rupture de la couche α(O) post-essai de compression d'anneaux sur une gaine oxydée 520s à 1200°C (ECR de 10%) et trempée.	40
Figure 27 : Figures de pôles obtenues par cartographie EBSD des axes c (00.1), des axes a (11.0), et des plans prismatiques (10.0) pondérées avec la taille des grains de la couche α(O) d'une gaine oxydée 1349s à 1100°C trempée à l'eau (ECR de 10%).	40
Figure 28 : Figure de pôles inverse obtenue par cartographie EBSD de la couche α(O) d'une gaine oxydée 1349s à 1100°C trempée à l'eau (ECR de 10%).	41
Figure 29 : Schéma de l'orientation du réseau cristallin de la couche α(O) d'une gaine oxydée à haute température et trempée.	41
Figure 30 : Illustration de la fissuration de la couche α(O), et du déchaussement de quelques grains suite au polissage sur une gaine oxydée 187s à 1200°C en double face.	42
Figure 31 : Volume unitaire de la maille en fonction de la température, pour la zircone pure	43
Figure 32 : Image MEB en électrons rétrodiffusés d'une coupe transversale des couches externes d'une gaine en Zy-4 oxydée 520s à 1200°C, soit un ECR de 10%.	44
Figure 33 : Fractographies des faciès de rupture de la couche de zircone post-essai de compression d'anneaux sur une gaine oxydée 520s à 1200°C (ECR de 10%) et trempée.	44
Figure 34 : Micrographie (MEB) de l'état de surface d'une gaine en Zy-4 oxydée 1349s à 1100°C (10% ECR) et trempée.	45
Figure 35 : Evolution du module d'Young de la zircone pure en phase monoclinique avec la température selon YEUGO et al. (2006) et RYSHKEWITCH (1960).	45
Figure 36 : Schéma de l'échantillon analysé par diffraction des neutrons.	46
Figure 37 : Schéma des repères utilisés pour l'analyse en diffraction de neutrons. Le volume de jauge est illustré en bleu.	47
Figure 38 : Profils de contraintes thermiques selon x et y obtenues par calcul analytique (avec les deux hypothèses) pour le cas d'une plaquette oxydée en double face 3520s à 1250°C et trempée à l'air à température ambiante. Seule la moitié du profil est représentée.	48
Figure 39 : Schéma de la géométrie du dispositif pour essai de compression d'anneaux utilisé au SRMA/CEA. Le diamètre de la gaine est de 9,5mm.	53
Figure 40 : Reproductibilité des courbes de force- déplacement obtenues par essai de compression d'anneaux sur gaine oxydée selon différentes conditions, puis trempée, pour nos quatre cas d'étude.	54
Figure 41 : Courbe force-déplacement pour un essai de compression sur un anneau en Zy-4 oxydé en simple face à 1100°C pendant 467s (ECR=6%) avec les images obtenues lors de l'enregistrement de l'essai.	55
Figure 42 : Images obtenues à la loupe binoculaire après essais de compression d'anneaux interrompus à différents stades pour des anneaux en Zy-4 oxydés simple face à 1100°C pendant 467s (ECR=6%).	56
Figure 43 : Courbes de force déplacement des échantillons en Zy-4 oxydés à 1100°C pendant 467s (ECR visé=6%) selon l'ECR obtenu. ECR obtenu = 6,3% en lignes continues, et ECR obtenu = 6,5% en pointillées.	57
Figure 44 : Courbe force-déplacement pour un essai de compression sur un anneau en Zy-4 oxydé en simple face à 1100°C pendant 1349s (ECR=10%) avec les images obtenues lors de l'enregistrement de l'essai.	58
Figure 45 : Images obtenues à la loupe binoculaire après essais de compression d'anneaux interrompus à différents stades pour des anneaux en Zy-4 oxydés simple face à 1100°C pendant 1349s (ECR=10%).	59
Figure 46 : Courbe force-déplacement pour un essai de compression sur un anneau en Zy-4 oxydé en simple face à 1200°C pendant 520s (ECR=10%) avec les images obtenues lors de l'enregistrement de l'essai.	60
Figure 47 : Images obtenues lors de l'enregistrement des essais, des différentes localisations des fissurations observées sur les éprouvettes prélevées sur l'échantillon en Zy-4 oxydé à 1200°C pendant 520s (ECR=10%), suite à la première chute de charge.	60
Figure 48 : Images obtenues à la loupe binoculaire après essais de compression d'anneaux interrompus à différents stades pour des anneaux en Zy-4 oxydés simple face à 1200°C pendant 520s (ECR=10%).	61

Figure 49 : Courbe force-déplacement pour un essai de compression sur un anneau en Zy-4 oxydé en simple face à 1200°C pendant 1492s (ECR=17%) avec les images obtenues lors de l'enregistrement de l'essai.	62
Figure 50 : Images obtenues à la loupe binoculaire après essais de compression d'anneaux interrompus à différents stades pour des anneaux en Zy-4 oxydés simple face à 1200°C pendant 1492s (ECR=17%).	63
Figure 51 : Corrélation entre les courbes de force déplacement et les images filmées au niveau du contact supérieur pour des tronçons de gaine oxydés à 1200°C à un ECR de 10%, et testés par RCT.	64
Figure 52 : Corrélation entre les courbes de force déplacement et les images filmées au niveau du contact inférieur pour des tronçons de gaine oxydés à 1200°C à un ECR de 10%, et testés par RCT.	65
Figure 53 : Fractographies des 4 cas d'oxydation (Zy-4).	66
Figure 54 : Fractographie post-RCT (à gauche) et micrographie sur coupe polie en lumière polarisée (à gauche) sur gaine en Zy-4 oxydée 1349s à 1100°C (10% ECR).	67
Figure 55 : Courbes de force-déplacement des essais interrompus sur gaine oxydée.	68
Figure 56 : Image obtenue à la loupe binoculaire d'une gaine oxydée 1349s à 1100°C (ECR=10%) après RCT interrompu à un déplacement de la traverse de 1,6 mm, et images obtenues au MEB de sa zone dense de fissuration, et aux pôles suite à l'écaillage de la zircone, à 5mm du bord de l'échantillon.	69
Figure 57 : Bilan des observations des essais de compression d'anneaux.	69
Figure 58 : Courbe force-déplacement pour un essai de compression sur un anneau en Zy-4 oxydé en simple face à 1100°C pendant 467s (ECR=6%) et sablée, corrélée avec les images obtenues lors de l'enregistrement de l'essai.	71
Figure 59 : Courbes de force-déplacement obtenues par RCT sur les gaines sablées (en lignes continues) et sur gaines intègres (en pointillés).	72
Figure 60 : Schéma de la modélisation préliminaire de l'essai de compression d'anneaux par EF (STERN, 2007).	78
Figure 61 : Comparaison de la courbe de force déplacement simulée avec modèle préliminaire de du RCT avec la courbe expérimentale pour le cas d'une gaine oxydée à 1100°C pendant 187s (STERN, 2007).	78
Figure 62 : Maillage pour la simulation d'un RCT sur gaine oxydée 467s à 1100°C (6% ECR).	80
Figure 63 : Courbe de force déplacement d'un essai de compression réalisé à 20°C sur un cylindre en matériau à haute résistance mécanique (LE SAUX, 2009).	81
Figure 64 : Evolution du module d'Young en fonction de la teneur en oxygène à température ambiante après passage à haute température (800- 1070°C), suivant les sens axial et circonférentiel de la gaine (BUNNELL et al., 1977).	82
Figure 65 : Comparaison entre les courbes expérimentales et les courbes simulées pour des gaines préparées dans les conditions correspondant à nos trois cas d'étude, puis sablées. La teneur moyenne en oxygène de la couche ex-β est indiquée.	83
Figure 66 : Courbe de force-déplacement simulée pour le cas d'une gaine oxydée 1349s à 1100°C (10% ECR) en supposant que seule la couche ex-β et la zone biphasée contribuent à la tenue mécanique, comparée à la courbe expérimentale d'une gaine sablée de 466μm d'épaisseur.	84
Figure 67 : Evolution simulée de la contrainte principale maximale σ_{11} en fonction du déplacement de la traverse, et illustration de la déformée à 2,5mm de déplacement de la traverse avec cartographie de la contrainte principale σ_{11} pour une gaine oxydée 467s à 1100°C (6% ECR), puis sablée, avec une épaisseur de 497μm, et une teneur moyenne de 0,2 % mass. O.	85
Figure 68 : Discrétisation du profil d'oxygène (en rouge) d'une gaine oxydée 1349s à 1100°C (10% ECR) et trempée, pour la simulation du RCT, obtenue à partir du profil obtenu par microsonde électronique (en noir).	86
Figure 69 : Schéma de la définition du comportement de la couche α(O) à l'aide d'un comportement orthotrope.	88
Figure 70 : Définition des stades d'endommagement de la gaine au cours du RCT illustrée à partir des courbes de force-déplacement obtenues par RCT sur gaine oxydée 467s à 1100°C (6% ECR).	89
Figure 71 : Modélisation de la couche de zircone et de la géométrie de la gaine pour les trois simulations.	91
Figure 72 : Simulation du scénario de rupture des gaines oxydées 467s à 1100°C (6% ECR), sollicitées par RCT, selon les 3 stades d'endommagement de la gaine.	92
Figure 73 : Déformée simulée, déformée expérimentale et contrainte principale σ_{11} (MPa) à un déplacement de la traverse de x=0,7mm, simulation avec la géométrie 1.	92
Figure 74 : Déformée simulée, déformée expérimentale et contrainte principale σ_{11} (MPa) à un déplacement de la traverse de x=3mm, simulation avec la géométrie 3.	93

Figure 75 : Simulation du scénario de rupture des gaines oxydées 1349s à 1100°C (10% ECR), sollicitées par RCT, selon les 3 stades d'endommagement de la gaine.	93
Figure 76 : Simulation du scénario de rupture des gaines oxydées 520s à 1200°C (10% ECR), sollicitées par RCT, selon les 3 stades d'endommagement de la gaine.	94
Figure 78 : Champ de déformation plastique circonférentielle cumulée calculé pour chaque cas d'étude au déplacement correspondant au moment de la rupture. La zone verte n'est pas déformée, la bleu est en contraction (def. <0) et la rouge en extension (def.>0).	95
Figure 77 : Evolution de la déformation totale à rupture avec la teneur en oxygène, évaluée à partir de la striction des éprouvettes de traction de l'étude de STERN (2007), et à partir de la corrélation entre les simulations des essais de compression d'anneaux sur gaines sablées et les observations expérimentales de l'amorçage des fissures. Les conditions d'oxydation sont indiquées pour les gaines.	96
Figure 79 : Simulation du scénario de rupture des gaines hydrurées (97 ppm H dans la couche ex-β) et oxydées 467s à 1100°C (6% ECR), sollicitées par RCT, selon les 3 stades d'endommagement de la gaine.	97
Figure 80 : Simulation du scénario de rupture des gaines hydrurées (110 ppm H dans la couche ex-β) et oxydées 1349s à 1100°C (10% ECR), sollicitées par RCT, selon les 3 stades d'endommagement de la gaine.	97
Figure 81 : Simulation du scénario de rupture des gaines hydrurées (204 ppm H dans la couche ex-β) et oxydées 520s à 1200°C (10% ECR), sollicitées par RCT, selon les 3 stades d'endommagement de la gaine.	98
Figure 82 : Exemple de courbe de force déplacement pour une indentation réalisée en 3 cycles de charge par nanoindentation instrumentée.	113
Figure 83 : Profils de module d'Young obtenus par nanoindentation instrumentée des gaines en Zy-4 oxydées à 1100°C à différents taux d'oxydation.	115
Figure 84 : Profils de module d'Young obtenus par nanoindentation instrumentée des gaines en Zy-4 oxydées à 1200°C à différents taux d'oxydation.	115
Figure 85 : Profils de module d'Young obtenus par nanoindentation instrumentée sur une gaine oxydée 1349s à 1100°C (ECR=10%).	116
Figure 86 : Profils de module d'Young obtenus par nanoindentation instrumentée sur une gaine oxydée 117s à 1100°C (ECR=3%).	116
Figure 87 : spectromètre 6T1 du Laboratoire Léon Brillouin (LLB-Orphée) CEA-Saclay/CNRS.	117
Figure 88 : Figures de pôles obtenues par diffraction de neutrons sur la couche ex-β de deux gaines oxydées en conditions APRP (la direction axiale de la gaine correspond au centre de la figure de pôles).	118
Figure 89 : Schéma représentatif de l'échantillon analysé (illustration d'un échantillon un peu moins oxydé que celui analysé lors de l'expérience au LLB).	119
Figure 90 : Repères utilisés pour l'analyse en diffraction de neutrons sur la plaquette étudiée.	119
Figure 91 : Diffractogramme calculé en considérant les phases ex-β, α(O) et zircone, pour la longueur d'onde de 0,286 nm disponible sur le diffractomètre G5.2 du LLB-ORPHEE.	120
Figure 92 : Vue 3D d'un scan où chaque pattern correspond au profil d'intensité enregistré par le détecteur pour une valeur de Ψ donnée.	120
Figure 93 : Vue en 3D d'un scan en profondeur pour Ψ= -101° (absence de l'ex-β, plan (10.1) de la couche Zr(O) en position de diffraction).	121
Figure 94 : Diffractogramme relatif à la couche Zr(O), plan (10.1), pour les 4 angles Ψ choisis.	121
Figure 95 : Schéma du principe de détermination des contraintes en diffraction.	122
Figure 96 : Principe de la méthode de détermination des contraintes internes (schéma pour des rayons X, mais applicable également aux neutrons).	123
Figure 97 : Repères éprouvettes usinées sur chaque plaquette.	125
Figure 98 : Illustration du protocole de préparation de « matériaux modèles » - Observation de la microstructure à chaque étape.	126
Figure 99 : Révélation des hydrures en microscopie optique (lumière blanche) pour une plaquette hydrurée à 300 ppm H.	127
Figure 100 : Teneur en hydrogène estimée d'après la calorimétrie en fonction de la teneur en hydrogène mesurée lors du protocole d'hydruration sur échantillons témoins par CEZUS-AREVA.	127

Figure 101 : Dimensions des plaquettes et de l'éprouvette de traction (prélevée sur la plaquette), utilisées dans l'étude.	129
Figure 102 : Evolution de $R_{p0,2}$ en fonction de la teneur en oxygène (microdureté) à 25 et 135°C,	129
Figure 103 : Allongement à rupture des éprouvettes hydrurées et oxydées, testées à 25 et 135°C	130
Figure 104 : Evolution de « l'énergie de rupture » en fonction de la teneur en hydrogène pour les essais de traction réalisés à 135°C.....	130
Figure 105 : Evolution de la striction en fonction de la teneur en hydrogène pour les essais de traction réalisés à 135°C	130
Figure 106 : Evolution de l'énergie d'impact en fonction de la teneur d'hydrogène pour des essais de résilience menés sur des éprouvettes sous forme de gaine (BRACHET et al., 2008)	131
Figure 107 : Courbes de traction d'alliages de Zy-4 de teneur nominale en oxygène et 150 ppm d'hydrogène visé.	131
Figure 108 : Fractographie des éprouvettes de traction à 0,14 % mass. O et hydrurées jusqu'à 400 ppm.	133
Figure 109 : Fractographie des éprouvettes de traction à 0,25 % mass. O et hydrurées jusqu'à 400 ppm.	134
Figure 110 : Evolution du paramètre k en fonction de la teneur en oxygène pour des échantillons de Zy-4 de structure « ex β », hydrurés, oxydés et testés à 25 et 135°C.	135
Figure 111 : Courbe de traction vraie et simulée pour un échantillon de Zy-4 de structure « ex β » uniquement oxydé à 0,25% mass. et testé en traction à 135°C	136
Figure 112 : Diffractogramme obtenu en considérant la phase monoclinique et la phase tétragonale de la zircone obtenue par oxydation d'une gaine en Zy-4 à 1200°C en ambiance vapeur.	138
Figure 113 : Schéma de la simplification de la géométrie.	141
Figure 114 : Nomenclature utilisée en coordonnées cylindriques.	144
Figure 115 : Evolution des coefficients de dilatation thermique sécants, par teneur en oxygène en fonction de la température, pour une température de référence de 19°C (BUNNELL et al., 1977).	148
Figure 116 : Evolution du module d'Young par teneur en oxygène en fonction de la température (BUNNELL et al., 1977).	148
Figure 117 : Profils de contraintes circonférentielles dans l'épaisseur de la gaine oxydée 520s à 1200°C (10% ECR) calculés avec différentes discrétisations de la couche $\alpha(O)$	150
Figure 118 : Profils de contrainte radiale, circonférentielle et axiale dans l'épaisseur de la gaine oxydée 520s à 1200°C (10% ECR).	150
Figure 119 : Profils de contrainte radiale, circonférentielle et axiale dans l'épaisseur de la gaine oxydée 520s à 1200°C (10% ECR), calculés pour deux géométries différentes.	151
Figure 120 : Profils de contrainte radiale, circonférentielle et axiale dans l'épaisseur de la gaine oxydée 520s à 1200°C (10% ECR), calculés avec et sans accommodation de contraintes à haute température.	151
Figure 121 : Courbes de force-déplacement des essais de compression d'anneaux réalisés sur gaine en Zy-4 oxydée 50s à 1000°C (traitée β).	154
Figure 122 : Courbes de force-déplacement des essais de compression d'anneaux réalisés sur gaine en Zy-4 oxydée 467s à 1100°C (6,5% ECR).	154
Figure 123 : Courbes de force-déplacement des essais de compression d'anneaux réalisés sur gaine en Zy-4 oxydée 467s à 1100°C (6,3% ECR).	155
Figure 124 : Courbes de force-déplacement des essais de compression d'anneaux réalisés sur gaine en Zy-4 oxydée 1349s à 1100°C (10,3% ECR).	155
Figure 125 : Courbes de force-déplacement des essais de compression d'anneaux réalisés sur gaine en Zy-4 oxydée 520s à 1200°C (10,3% ECR).	156
Figure 126 : Courbes de force-déplacement des essais de compression d'anneaux réalisés sur gaine en Zy-4 oxydée 1492s à 1200°C (16,5% ECR).	156
Figure 127 : Courbes de force (à gauche) et de la contrainte maximale (à droite) en fonction du déplacement, pour les quatre maillages.	157
Figure 128 : Courbe de déformation maximale en fonction du déplacement, pour les quatre maillages.	158
Figure 129 : Courbe de force déplacement simulée et expérimentale et courbe de déformation maximale en fonction du déplacement, pour les trois maillages (gaine sablée).	159

Figure 130 : Simulations avec la géométrie 1 du premier stade d'endommagement des gaines oxydées 520s à 1200°C (10% ECR), sollicitées par RCT, avec 3 valeurs du module d'Young de la zircone.	159
Figure 131 : Simulations avec la géométrie 3 du troisième stade d'endommagement des gaines oxydées 520s à 1200°C (10% ECR), sollicitées par RCT, avec le module d'Young de la phase $\alpha(O)$ modifié à l'aide de 3 coefficients multiplicatifs.	160
Figure 132 : Simulations avec la géométrie 3 du troisième stade d'endommagement des gaines oxydées 467s à 1100°C (6% ECR), sollicitées par RCT, avec trois angles de transition différents.	161
Figure 133 : Courbes de force déplacement expérimentales et simulées pour des gaines préparées dans les conditions correspondant à nos trois cas d'étude, puis sablées, testées par RCT. La teneur moyenne en oxygène de la couche ex- β est indiquée.	163
Figure 134 : Courbes expérimentales et courbe simulée pour des RCT sur gaines oxydées 50s à 1000°C (0,7% ECR) et sablées, testées par RCT. La teneur moyenne en oxygène de la couche ex- β est de 0,14% mass. O, et l'épaisseur de simulation de la gaine est de 560 μm	164
Figure 135 : Courbes de force déplacement expérimentales et simulée (avec la géométrie 2 du scénario de rupture) pour une gaine oxydée 1492s à 1200°C (17% ECR).	164
Figure 136 : Fractographies post-essais de compression d'anneaux réalisés sur gaine en Zy-4 oxydée 467s à 1100°C (6,5% ECR).	168
Figure 137 : Fractographies post-essais de compression d'anneaux réalisés sur gaine en Zy-4 oxydée 1349s à 1100°C (10,3% ECR).	170
Figure 138 : Fractographies post-essais de compression d'anneaux réalisés sur gaine en Zy-4 oxydée 520s à 1200°C (10,3% ECR).	172
Figure 139 : Fractographies post-essais de compression d'anneaux réalisés sur gaine en Zy-4 oxydée 1492s à 1200°C (16,5% ECR).	173

Index des tableaux

Tableau 1 : Liste les éléments d'alliage selon leur caractère alphas ou bêta, et de leur effet en conditions normales de fonctionnement sur les propriétés du Zircaloy-4.	21
Tableau 2 : Conditions de préparation des échantillons, niveaux d'oxydation atteints, et épaisseurs moyennes des couches mesurées. ECR obtenu évalué à partir du gain de masse.	29
Tableau 3 : Coefficients des relations décrivant les évolutions en fonction de la concentration en oxygène et de la température des paramètres de la loi de Ludwik de la phase ex-β du Zy-4 pour des concentrations en oxygène comprises entre 0,14 et 0,9% mass. O et des températures comprises entre -100°C et 260°C.	36
Tableau 4 : Coefficients des relations décrivant la contrainte à rupture (en MPa) des éprouvettes présentant un comportement élastique-fragile, et de la contrainte maximale (en MPa) des éprouvettes ductiles, en fonction de la concentration en oxygène et de la température d'essai de la phase ex-β du Zy-4 pour des concentrations en oxygène comprises entre 0,14 et 0,9% mass. O et des températures comprises entre -100°C et 260°C.	36
Tableau 5 : Paramètres de maille de la zircone obtenue à partir de l'oxydation à haute température du Zy-4 comparés à ceux de la zircone pure (KISI et al., 1998).	43
Tableau 6 : Conditions de préparation des échantillons, épaisseurs des couches mesurées par microscopie optique et données concernant l'épaisseur enlevée par sablage.	71
Tableau 7 : Epaisseurs des couches utilisés pour les simulations par cas d'étude.	80
Tableau 8 : Coefficients de la fonction de forme de la pointe utilisée au SRMA	114
Tableau 9 : Descriptif de la préparation des échantillons de Zy-4 « ex β », chargés en hydrogène et en oxygène à différentes teneurs.	126
Tableau 10 : Teneur en oxygène (par microdureté) et d'hydrogène (par calorimétrie) des plaquettes homogénéisées.	128
Tableau 11 : Paramètres de maille obtenus à partir des affinements Rietveld.	138
Tableau 12 : Conditions de préparation des échantillons en Zy-4, niveaux d'oxydation atteints, et épaisseurs moyennes des couches mesurées. ECR obtenu évalué à partir du gain de masse.	153
Tableau 13 : Nombre d'éléments par couche pour chacun des maillages simulés.	157
Tableau 14 : Nombre d'éléments pour chacun des maillages simulés (gaine sablée).	158

Chapitre 1 : Introduction et contexte

Ce premier chapitre constitue une introduction au contexte technique de notre étude. Son objectif est de situer la gaine de combustible, objet de ce travail, au cœur du réacteur pendant l'Accident de Perte de Réfrigérant Primaire (APRP). Nous y présentons d'abord une description générale du fonctionnement des réacteurs à eau pressurisée, en mettant en avant le rôle de la gaine au sein de ceux-ci. Nous abordons ensuite l'APRP et les critères de sûreté, puis nous présentons les axes généraux de l'étude.

Chapitre 1 : Introduction et contexte	11
1.1. La gaine en alliage de zirconium au sein du réacteur	13
1.2. Le scénario APRP	14
1.3. Les critères de sûreté pour l'APRP	15
1.4. Objectifs et démarche de l'étude.....	15

1.1. La gaine en alliage de zirconium au sein du réacteur

Les Réacteurs à Eau Pressurisée (REP) constituent l'essentiel du parc actuel français pour la production de l'énergie électrique. Schématiquement, ce type de réacteur est composé du cœur contenu dans la cuve reliée à un circuit primaire fermé d'eau sous pression. Ce premier circuit est en contact avec un deuxième circuit d'eau, lui aussi fermé, qui entraîne les turbines pour produire de l'énergie. Le refroidissement de ce dernier est assuré par un circuit ouvert sur une source froide (mer, aéroréfrigérant, etc.) La Figure 1 représente schématiquement le fonctionnement de ce type de réacteur :

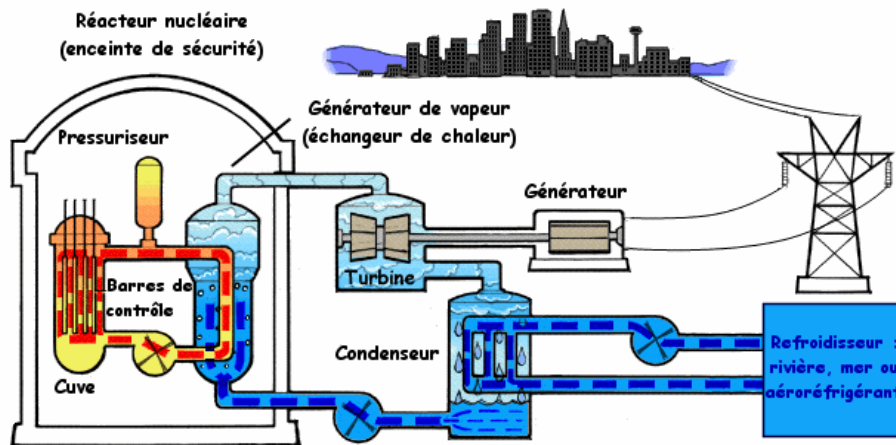


Figure 1 : Représentation schématique du fonctionnement d'un REP (ALMAGESTE, 2006).

Le combustible nucléaire au cœur d'un REP est, en général, de l'oxyde d'uranium faiblement enrichi en U_{235} . Il se présente sous forme de pastilles empilées dans des gaines métalliques. L'ensemble des pastilles et de la gaine constitue un crayon combustible. Les crayons sont assemblés et maintenus régulièrement espacés par des grilles (Figure 2). Un assemblage 17x17 en réseau carré contient 289 crayons, et est constitué par des crayons dont les gaines mesurent plus de 4m de hauteur, 9,50mm de diamètre extérieur et 0,57mm d'épaisseur. Le cœur d'un REP peut contenir entre 120 et 250 de ces assemblages combustibles.

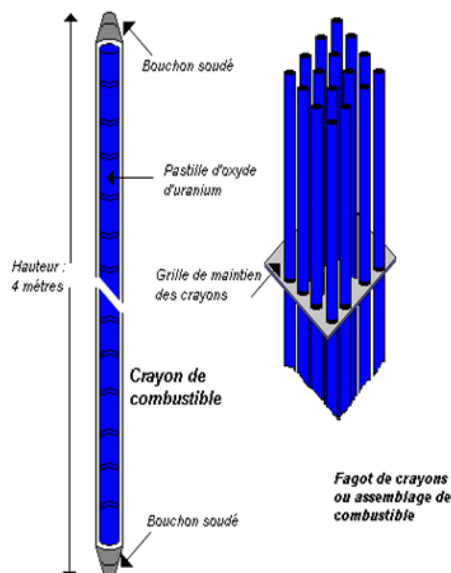


Figure 2 : Assemblage et crayon combustible (INPL-LYON, 2009).

En conditions nominales de fonctionnement, l'eau du circuit primaire circule sous une pression de 155 bar et à une température allant jusqu'à 350°C, le long des crayons au sein desquels se produit la réaction nucléaire en chaîne. La gaine, qui doit assurer le transfert thermique entre le

combustible et le liquide caloporteur, constitue la première barrière de confinement du combustible et des produits de fission.

Les alliages de zirconium sont utilisés comme matériau de gainage dans les REP, car ils présentent un compromis acceptable entre la perméabilité aux neutrons, la tenue à la corrosion par l'eau en conditions nominales de fonctionnement, la tenue mécanique à chaud, et la ductilité à froid qui facilite leur mise en forme (CHARQUET). Dans la mesure où la gaine doit assurer au sein du réacteur des fonctions critiques en toutes circonstances, on s'intéresse à son comportement en service ainsi qu'en cas de scénarios accidentels.

1.2. Le scénario APRP

L'accident par Perte de Réfrigérant Primaire (APRP) est une situation accidentelle de référence pour le dimensionnement des REP. Il consiste essentiellement en la rupture totale ou partielle de la tuyauterie du circuit primaire. L'accident est maîtrisé par la réinjection d'eau, ou « renoyage du cœur ». Au cours de ce transitoire accidentel, les gaines de crayons combustibles sont portées rapidement à haute température (typiquement entre 800 et 1200°C), en présence de vapeur d'eau et avec une pression interne significative.

Ce scénario se déroule schématiquement en deux étapes de la façon suivante :

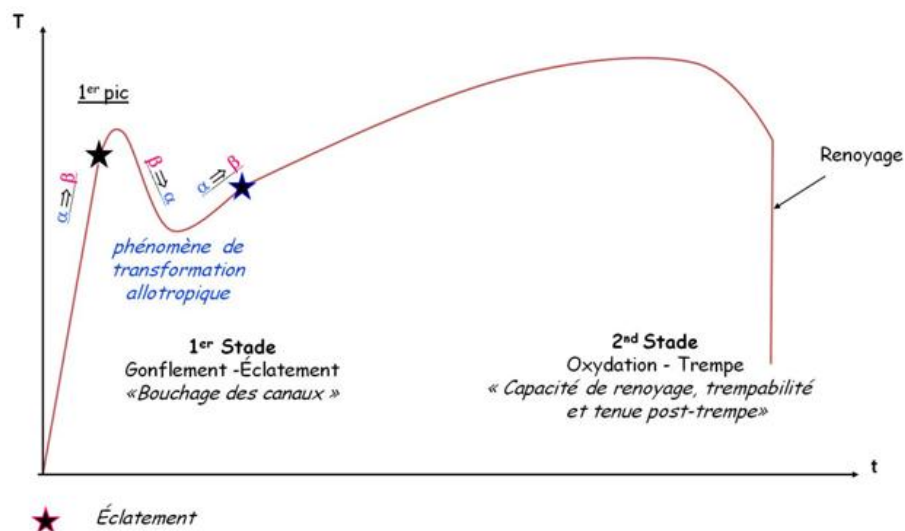


Figure 3 : Schéma en temps-température du transitoire subi par les gaines en alliage de zirconium dans le cadre d'un APRP. Les domaines où un éclatement local de la gaine est possible sont signalés avec une étoile (VANDENBERGHE, 2011).

Phase (1), gonflement-rupture :

Dans un premier temps, la perte de réfrigérant entraîne une dépressurisation de 155 à quelques bar. La pression de saturation de la vapeur est atteinte en un dixième de seconde environ, suivie par l'ébullition de l'eau. Les échanges thermiques entre gaine et réfrigérant étant alors dégradés, cela provoque localement une très forte élévation de la température. Par la suite, les gaines sont soumises à une pression interne de quelques dizaines de bar due à la présence d'hélium introduit initialement dans les crayons, et au relâchement des gaz de fission créés lors de l'irradiation du combustible, en fonctionnement nominal. Dans ce contexte, les gaines fluent et gonflent, ce qui risque d'obstruer les canaux de refroidissement. Dans le cas éventuel d'un éclatement, une perte de combustible peut avoir lieu. Lors de cette première phase, le recuit des gaines entraîne la disparition des défauts d'irradiation apparus en service (PORTIER et al., 2005).

Phase (2), oxydation haute température et renoyage du cœur :

La température de la gaine peut atteindre localement les 1200°C. En présence de vapeur d'eau, les gaines s'oxydent rapidement à partir de la face externe, ce qui les fragilise. La chaleur est finalement évacuée par la mise en action des injecteurs de secours. Ceux-ci débitent de l'eau dans le circuit primaire afin de compenser la perte de masse par la brèche, et améliorent le refroidissement des gaines. Par la suite, l'activation du renoyage du cœur par le bas provoque l'arrivée du front de trempe, à température ambiante, en regard du gainage. Ce renoyage, à condition que les canaux ne soient pas totalement bouchés, refroidit efficacement l'ensemble, et trempe les gaines. La température estimée de stabilisation du cœur après le renoyage est de 135°C.

En général, l'étude de l'incidence d'un APRP sur le comportement mécanique des gaines en alliage de zirconium est traitée séparément pour ces deux phases. Le travail ici exposé aborde seulement la deuxième partie du scénario, c'est-à-dire celle qui concerne l'oxydation et la trempe des gaines. Dans ce cadre, la gaine comporte schématiquement trois couches après oxydation et trempe : une première couche extérieure de zircone très riche en oxygène (ZrO_2) fragile à basse température, une deuxième couche de phase α stabilisée par l'oxygène ($\alpha(O)$) elle aussi fragile, et une troisième couche interne de phase dite « ex- β » qui est la seule à pouvoir garder une certaine ductilité à basse température. Cependant, en cas de prise d'hydrogène due à la corrosion en service et/ou pendant le transitoire, l'hydrogène a tendance à se concentrer dans cette couche interne ex- β en induisant une fragilisation supplémentaire.

1.3. Les critères de sûreté pour l'APRP

Des critères ont été mis en place dès les années 1970 pour garantir les marges de sûreté en cas d'APRP (HACHE et CHUNG, 2001). Ces critères sont définis en cinq points :

- La température maximale pouvant être atteinte par la gaine a été fixée à 1204°C (2200°F) afin de préserver sa ductilité « post-trempe ».
- La fraction d'épaisseur oxydée de la gaine (Equivalent Cladding Reacted - ECR), doit rester inférieure à 17% pour préserver la ductilité « post-trempe » de la gaine à 135°C.
- La quantité d'hydrogène générée par la réaction eau/zirconium ne doit pas dépasser 1% de la quantité obtenue si tout le matériau des gaines des crayons combustibles, sur leur hauteur active, était consommé.
- La géométrie du cœur, après toutes déformations, doit permettre son refroidissement.
- Le refroidissement doit pouvoir être maintenu à long terme.

1.4. Objectifs et démarche de l'étude

Afin de caractériser le comportement résiduel de la gaine à l'issue d'un transitoire APRP, les Essais de Compression d'Anneaux (Ring Compression Tests- RCT en anglais) sont généralement utilisés pour évaluer les propriétés mécaniques « post trempe » de la gaine, car ils sont simples à mettre en œuvre. Ils sont également peu consommateurs de matière, ce qui est un atout important pour d'éventuels essais comparatifs sur matériaux irradiés. Malheureusement, les courbes de force-déplacement ainsi obtenues, bien que très reproductibles (Figure 4), ont une évolution assez complexe, et sont sujettes à des interprétations diverses.

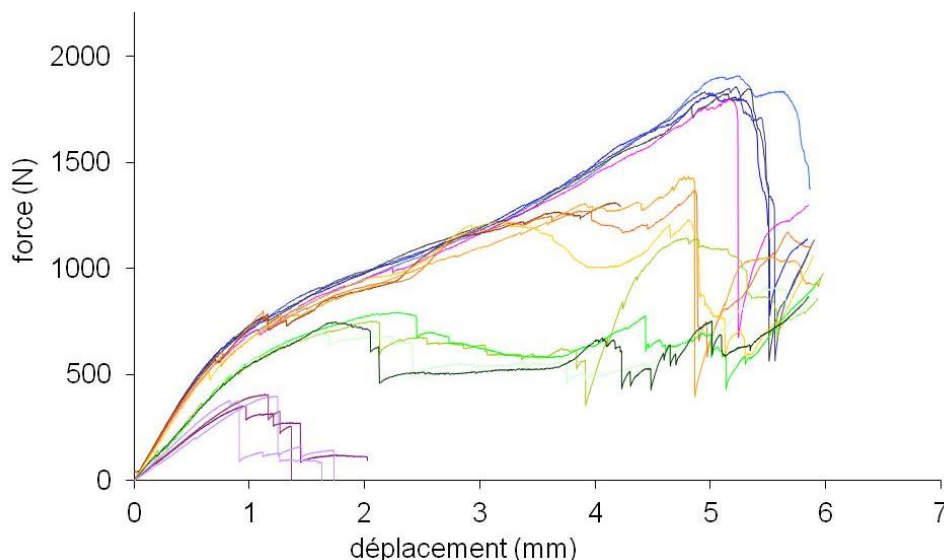


Figure 4 : Reproductibilité des courbes de force déplacement des essais de compression d'anneaux sur des gaines en Zy-4 oxydées en simple face à 1100°C à différents taux d'oxydation, et trempées à l'eau.

STERN (2007) et JESSON (2011) ont identifié des lois de comportement du Zy-4 sur des matériaux modèles représentatifs des couches résultant de l'oxydation et la trempe, pour différentes teneurs en oxygène et différentes températures d'essai. STERN (2007) a également entrepris une modélisation préliminaire par Eléments Finis (EF) d'un essai de compression d'anneaux sur gaine, où il a pris en compte le comportement du matériau « stratifié » à l'issue de l'oxydation à haute température.

L'objectif de l'étude ici présentée est de proposer un scénario de rupture des différentes couches de la gaine en Zy-4 oxydée et trempée en conditions APRP, sollicitée par un essai de compression d'anneaux à température ambiante. Dans ce sens, nous présentons la modélisation du comportement mécanique de la gaine ainsi que l'affinement du modèle préliminaire de l'essai de compression d'anneaux proposé par STERN (2007). Cette approche intègre à la fois l'évaluation des contraintes d'origine thermique résultant de la trempe après oxydation à haute température, l'influence de la variation de la teneur en oxygène dans les différentes couches sur les lois de comportement respectives, et l'endommagement progressif des différentes couches au cours de l'essai.

Le scénario proposé s'appuie sur des essais de compression d'anneaux interrompus, des observations fines des couches de zircon et $\alpha(O)$ pour l'évaluation de l'endommagement, des essais sur anneaux « monocouche ex- β », et des lois de comportement obtenues sur matériaux modèles.

Ce manuscrit s'organise en 4 parties. Après les éléments de contexte présentés dans ce premier chapitre, nous présentons au chapitre 2 le matériau qui fait l'objet de ce travail : la gaine en Zy-4 oxydée en conditions APRP et trempée à l'eau. Dans cette deuxième partie nous exposons les propriétés mécaniques et les caractéristiques métallurgiques disponibles dans la littérature, ainsi que la préparation et les expériences qui nous ont permis de compléter la caractérisation du matériau étudié.

La troisième partie expose l'analyse détaillée des essais de compression d'anneaux menés sur des gaines oxydées et trempées en conditions APRP. Nous nous intéressons dans ces expériences à la corrélation entre les courbes de force déplacement et les phénomènes d'endommagement observés au cours des essais, ainsi qu'au rôle que joue chacune des couches formant la gaine stratifiée dans la réponse mécanique globale.

La quatrième et dernière partie présente un modèle par éléments finis de l'essai de compression d'anneaux sur gaine oxydée et trempée en conditions APRP. L'objectif de ce chapitre est de proposer un modèle appuyé sur les acquis expérimentaux qui permette d'expliquer le scénario de

rupture de la gaine sollicitée en compression, pour finalement proposer un critère de rupture de la gaine oxydée et trempée en conditions APRP.

A l'issue de ces quatre parties, la conclusion générale et les perspectives de ce travail sont présentées.

Chapitre 2 : Revue bibliographique et caractérisations complémentaires des propriétés métallurgiques et mécaniques du Zy-4

Ce chapitre présente le matériau qui fait l'objet de ce travail : la gaine en Zy-4 oxydée en conditions APRP et trempée à l'eau. Nous y exposons les propriétés mécaniques et les caractéristiques métallurgiques disponibles dans la littérature, ainsi que les expériences qui nous ont permis de préparer et caractériser le matériau étudié. Un soin particulier est porté à la présentation des mécanismes d'oxydation de la gaine à haute température.

Chapitre 2 : Revue bibliographique et caractérisations complémentaires des propriétés métallurgiques et mécaniques du Zy-4 19

2.1.	Le Zircaloy-4 : un alliage base zirconium pour le gainage	21
2.2.	La transformation de phase $\beta \rightarrow \alpha$ au refroidissement.....	21
2.2.1.	La relation de Burgers.....	22
2.2.2.	La microstructure après la transformation $\beta \rightarrow \alpha$	23
2.3.	Corrosion de la gaine au sein du réacteur.....	25
2.3.1.	Conditions nominales de fonctionnement : oxydation et hydruration de la gaine	25
2.3.2.	APRP : oxydation à haute température et trempe de la gaine.....	25
2.4.	La gaine après oxydation à haute température et trempe : caractérisation du matériau stratifié	28
2.4.1.	Obtention des échantillons oxydés en conditions APRP	28
2.4.2.	Caractérisation de la gaine stratifiée post-oxydation et trempe.....	32
2.4.2.1.	Profil de module d'Young de la gaine oxydée	32
2.4.2.2.	Propriétés de la couche interne ex- β de la gaine oxydée	34
2.4.2.3.	Comportement mécanique de la phase ex- β chargée en oxygène et en hydrogène	39
2.4.2.4.	Propriétés de la couche $\alpha(O)$	39
2.4.2.5.	Propriétés de la zircone	42
2.4.3.	Etat de contraintes de la gaine stratifiée après trempe	46
2.5.	Conclusion : Etat de la gaine oxydée et trempée en conditions APRP	49

2.1. Le Zircaloy-4 : un alliage base zirconium pour le gainage

Plus de 80% du zirconium produit dans le monde est utilisé pour le gainage des combustibles nucléaires dans les réacteurs à eau (CHARQUET). Le Zircaloy-4 (Zy-4), un alliage base zirconium, est majoritairement employé dans le parc actuel pour la production de l'énergie électrique en France. Cet alliage, comme le zirconium pur, est caractérisé par l'existence de deux phases, α et β , ainsi que par une transformation de phase allotropique. Pour le zirconium pur, la transformation est observée à 862°C. La phase stable à haute température est la phase β , de structure cubique centrée de paramètre de maille $a = 0,361\text{nm}$ à 870°C. La phase stable à basse température est la phase α , de structure hexagonale compacte de paramètres de maille $a=0,323\text{nm}$ et $c=0,515\text{nm}$ à 20°C.

Pour le Zircaloy-4 les principaux éléments d'alliage sont l'étain, le fer, le chrome et l'oxygène. En dessous de 600°C, certains de ces éléments sont susceptibles de former des phases secondaires. Suivant leur affinité respective vis-à-vis des 2 phases allotropiques du zirconium, les éléments d'alliage peuvent être classés en alphagènes ou bêtagènes. Les éléments bêtagènes ont une faible limite de solubilité dans la phase α , à la différence des éléments alphagènes. Le Tableau 1 liste les éléments d'alliage selon leur caractère alphagène ou bêtagène, ainsi que leur effet en conditions normales de fonctionnement sur les propriétés mécaniques et physico chimiques du matériau :

Caractère	Elément	% mass.	Effets sur les propriétés du Zy-4
(β-gène)	Fe	0,18 – 0,24	Le fer et le chrome sont présents sous forme de précipités $\text{Zr}(\text{Fe}, \text{Cr})_2$, améliorent la résistance à la corrosion, et limitent la croissance des grains, améliorant ainsi la résistance mécanique.
	Cr	0,07 – 0,13	
(α-gène)	O	0,09 – 0,15	L'oxygène est présent sous forme interstitielle dans la matrice de Zr et améliore la résistance mécanique de l'alliage sans nuire à sa tenue à la corrosion.
	Sn	1,2 – 1,5	L'étain est présent sous forme substitutionnelle dans la matrice de Zr en quantité contrôlée car il améliore les caractéristiques mécaniques du matériau, mais il dégrade la résistance à la corrosion.

Tableau 1 : Liste les éléments d'alliage selon leur caractère alphagène ou bêtagène, et de leur effet en conditions normales de fonctionnement sur les propriétés du Zircaloy-4.

2.2. La transformation de phase $\beta \rightarrow \alpha$ au refroidissement

On s'intéresse, dans cette partie, à la transformation de phase $\beta \rightarrow \alpha$ que subissent les gaines au refroidissement, lors du renoyage du cœur au cours de l'APRP. Nous rappelons que l'objet de notre étude est le matériau tel qu'obtenu en fin de scénario : nous étudions le comportement post-oxydation et trempe des gaines en Zy-4.

2.2.1. La relation de Burgers

En 1934, BURGERS a énoncé les relations cristallographiques régissant la transformation $\beta \rightarrow \alpha$ du zirconium à l'équilibre :

$$\{110\}_{\beta} // \{0001\}_{\alpha}$$

$$\langle 111 \rangle_{\beta} // \langle 11\bar{2}0 \rangle_{\alpha}$$

Cette transformation peut être décrite suivant plusieurs étapes.

Une maille prismatique dont le plan de base est un plan de type $\{110\}_{\beta}$ est considérée en groupant 5 mailles cubiques. Ses paramètres sont indiqués dans la Figure 5.

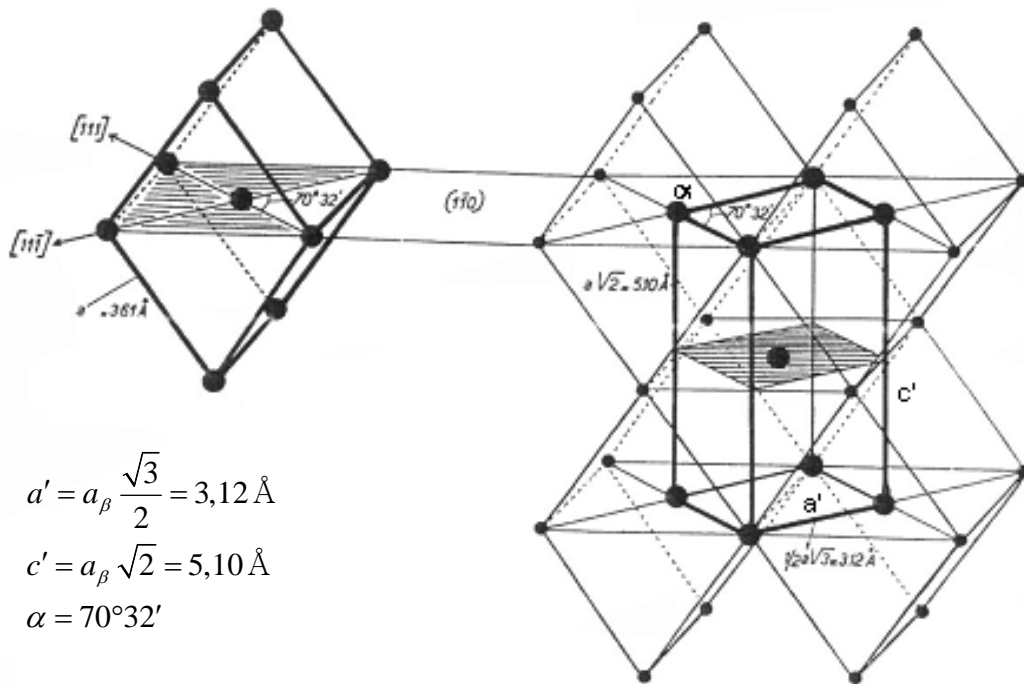


Figure 5 : Maille prismatique à partir du réseau cubique (BURGERS, 1934).

L'angle α atteint une valeur de 60° . BURGERS (1934) propose alors un cisaillement simple dans un plan de type $\{112\}_{\beta}$ parallèle à l'axe c' et selon la direction de type $\langle 111 \rangle_{\beta}$. Les deux arêtes de la base de la maille prismatique ne forment plus un losange et leurs longueurs sont désormais différentes (a_1' et a_2'). Selon le plan et la direction de cisaillement, une des deux arêtes s'allonge alors que la seconde reste inchangée. Les nouveaux paramètres de maille sont indiqués dans la Figure 6.

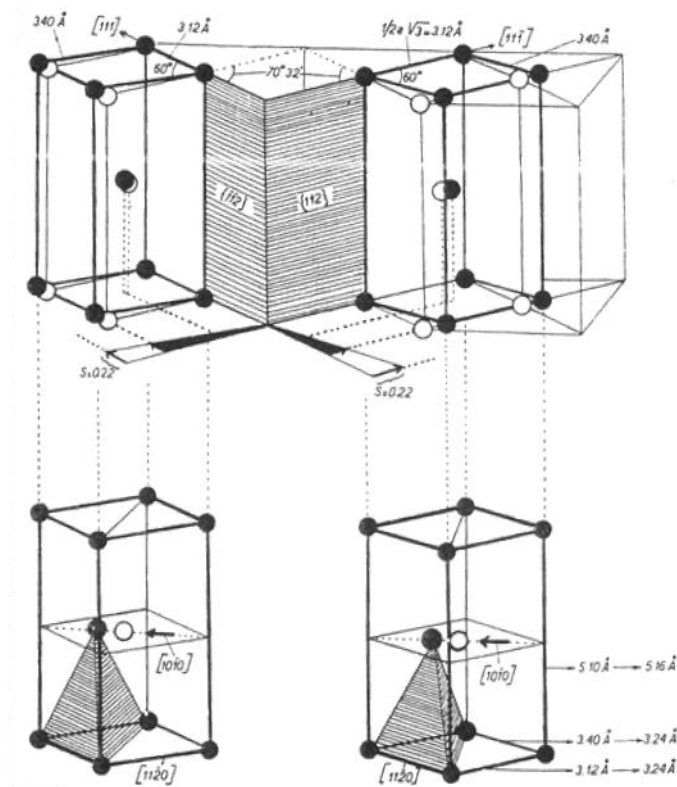


Figure 6 : Formation de la maille hexagonale (BURGERS, 1934).

$$a'_1 = a_\beta \frac{\sqrt{3}}{2} = 3,12 \text{ \AA}$$

$$a'_2 = 3,40 \text{ \AA}$$

$$c' = a_\beta \sqrt{2} = 5,10 \text{ \AA}$$

$$\alpha = 60^\circ$$

Un réarrangement atomique a lieu. D'une part, une légère dilatation s'opère le long de l'axe c' ; elle se caractérise par un déplacement le long de $[10.0]$ des atomes situés dans un plan (00.1) sur deux. D'autre part, la base du prisme est transformée en losange en déplaçant des atomes le long des arêtes de manière à allonger un côté du parallélogramme initial et à réduire le second.

Dans le mécanisme proposé par BURGERS (1934), les plans et les directions denses de la phase β se trouvent bien être aussi les plans et les directions denses de la maille hexagonale obtenue. Il existe, pour chacun des 6 plans $\{110\}_\beta$ initiaux, deux plans de cisaillement possibles, ce qui conduit à 12 variants de phase α à partir d'un cristal de phase mère β .

2.2.2. La microstructure après la transformation $\beta \rightarrow \alpha$

Deux domaines de transformation peuvent être identifiés. Ils sont délimités par la vitesse critique de trempe martensitique v_c , dont l'ordre de grandeur se trouve aux alentours de 1000-1500°C/s pour le Zy-4. A des vitesses de trempe très élevées, supérieures à v_c , une transformation martensitique sans diffusion permet d'obtenir une structure en « aiguilles », ou « fines plaquettes ».

A des vitesses faibles, inférieures à v_c , une transformation allotropique où des phénomènes de diffusion jouent sur la croissance permet d'obtenir une structure de type bainitique, appelée microstructure de Widmanstätten (Figure 7). On y observe deux types de morphologies constituées de lamelles α : la structure en plaquettes parallèles et la structure en « vannerie » ou « panier tressé ».

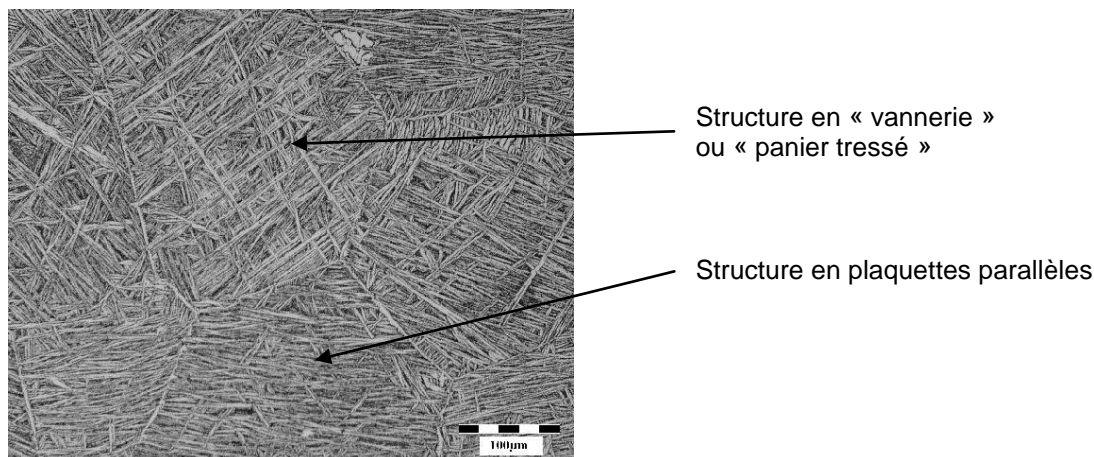


Figure 7 : Morphologie type de la microstructure du Zircaloy-4 refroidi à des vitesses faibles (CHAUVY, 2004).

Plusieurs facteurs sont susceptibles de favoriser l'apparition de l'une ou de l'autre de ces structures. HOLT (1970) a suggéré une différence de mécanisme de germination de la phase α . Les particules insolubles en phase β , agissent comme sites de germination. Il faut noter que les joints de grain β constituent également des sites de germination privilégiés. Lorsque la germination se fait plutôt en volume sur les impuretés, cela aboutit à une structure en vannerie, alors qu'une germination préférentielle aux joints de grain conduit à une structure de plaquettes parallèles (CREPIN, 1995, Figure 8).

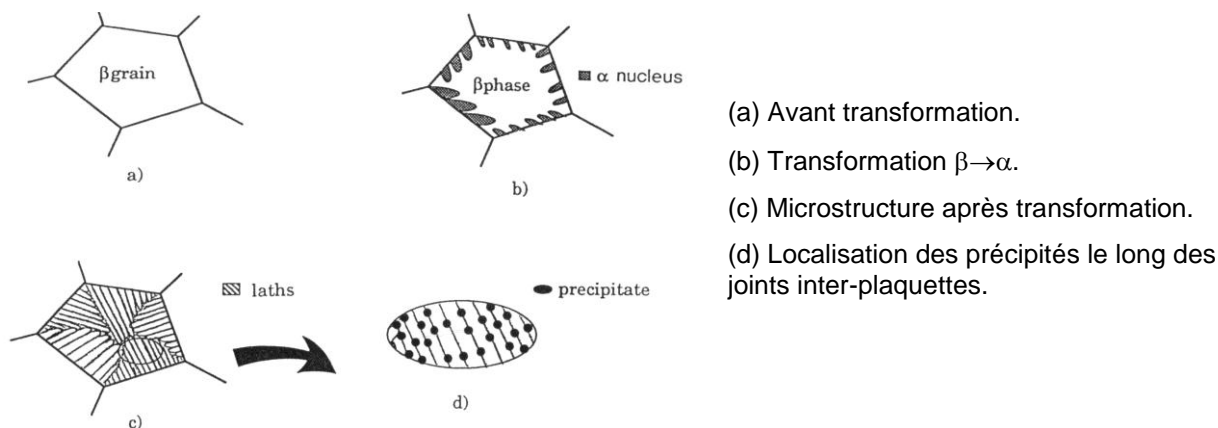


Figure 8 : Schéma simplifié de la transformation $\beta \rightarrow \alpha$ avec germination sur les joints de grains β . D'après CREPIN, 1995.

Globalement, l'augmentation du nombre de sites favorise la structure en vannerie plutôt que celle en plaquettes parallèles. En ce qui concerne la taille des lamelles, quelle que soit la morphologie, la microstructure s'affine d'autant plus que la vitesse de trempe est élevée (WOO et TANGRI, 1979 ; MASSIH et al., 2003 ; STERN, 2007).

Dans le cadre d'un APRP, le refroidissement des gaines a lieu d'abord à des vitesses inférieures à 10°C/s . Par la suite, une trempe à l'eau entraîne un refroidissement immédiat à partir d'une température typiquement comprise entre ~ 500 et 1000°C (GARDE et MITCHELL, 2011). Pour le Zircaloy-4, la microstructure finale dépend fortement de la vitesse de refroidissement et de la température finale depuis laquelle la trempe s'opère. La trempe à l'eau, bien que rapide, n'interdit toutefois pas des phénomènes de diffusion/ redistribution des éléments tels que le fer ou l'oxygène (STERN, 2007).

2.3. Corrosion de la gaine au sein du réacteur

L'oxygène présente une grande affinité avec le zirconium, si bien qu'il est très difficile d'éviter qu'une fine couche d'oxyde (de l'ordre de quelques nm) ne se forme à la surface d'un alliage de zirconium, même à température ambiante. Cette couche d'oxyde formée est la zircone.

Au sein d'un réacteur à eau pressurisée, que ce soit en conditions nominales de fonctionnement, ou dans le cadre d'un transitoire accidentel de type APRP, la gaine en alliage de zirconium subit en permanence une oxydation. Le schéma suivant, rappelé par BUSSE (2009) à partir des travaux de PARISE (1996), présente la mobilité des espèces oxydantes pour une oxydation de la gaine en milieu eau :

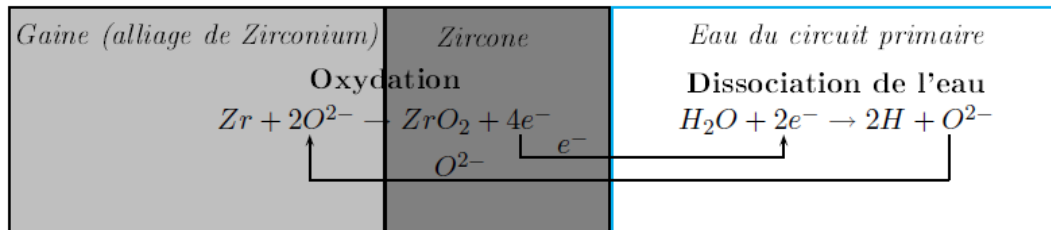


Figure 9 : Mobilité des espèces oxydantes pour une oxydation en milieu eau (BUSSE (2009) d'après PARISE (1996))

Dans la mesure où il s'agit d'un phénomène thermiquement activé, l'oxydation sera plus rapide à des températures plus élevées.

2.3.1. Conditions nominales de fonctionnement : oxydation et hydruration de la gaine

Lorsque le réacteur est en conditions nominales de fonctionnement, la gaine est oxydée sur sa surface externe par l'eau pressurisée à 350°C. Dans ces conditions, la réaction d'oxydation s'opère très lentement, avec une diffusion très limitée de l'oxygène dans le substrat métallique sous-jacent (~1 à 2 µm). Une couche de zircone de structure principalement monoclinique se forme à l'extérieur de la gaine, dont le substrat métallique reste en phase α, stable à cette température.

Des atomes d'hydrogène sont aussi produits par dissociation de la molécule d'eau. Une partie de cet hydrogène est absorbée par la gaine. La limite de solubilité de l'hydrogène dans la phase α étant faible à basse température, l'hydrogène absorbé réagit avec le zirconium pour former des hydrures sous forme de précipités.

En fin de vie, la teneur en hydrogène est estimée à 600 ppm (mass.) dans la zone la plus chaude de la gaine pour le Zy-4. L'épaisseur maximale de la couche extérieure de zircone, quant à elle, est de l'ordre de 70 µm.

2.3.2. APRP : oxydation à haute température et trempe de la gaine

Au cours de la deuxième phase d'un APRP, les gaines de combustible en alliages de zirconium subissent une oxydation à haute température (entre 800 et 1200°C) en ambiance vapeur, à partir de la face externe de la gaine. Cette oxydation à haute température conduit aussi à la formation d'une couche de zircone, mais, contrairement à l'oxydation en conditions nominales de fonctionnement du réacteur, elle entraîne la diffusion d'une fraction significative de l'oxygène dans le métal sous-jacent.

Lorsque la gaine se trouve en milieu oxydant, à des températures élevées (≥ 900°C), l'oxydation est régie par la diffusion en phase solide de l'oxygène (de type anodique). La croissance de la couche d'oxyde initiale s'effectue par transport d'oxygène de l'environnement vers l'interface métal/oxyde où a lieu la réaction chimique. Seule une partie de l'oxygène qui arrive à l'interface interne entre en jeu dans cette réaction, l'autre partie diffuse dans le métal sous-jacent.

La diffusion de l'oxygène dans le métal, initialement en phase β à haute température, a pour conséquence une augmentation locale de la teneur en oxygène. D'après le diagramme binaire Zr-O (Figure 10), cette teneur a une influence sur l'état cristallographique du zirconium aux températures d'oxydation (800-1200°C). L'oxygène étant un élément alphagène, une couche de phase α se forme dans le métal immédiatement sous-jacent à la couche de zircone. Le restant de la couche métallique, encore en phase β , contient beaucoup moins d'oxygène du fait de la faible limite de solubilité de l'oxygène dans cette phase.

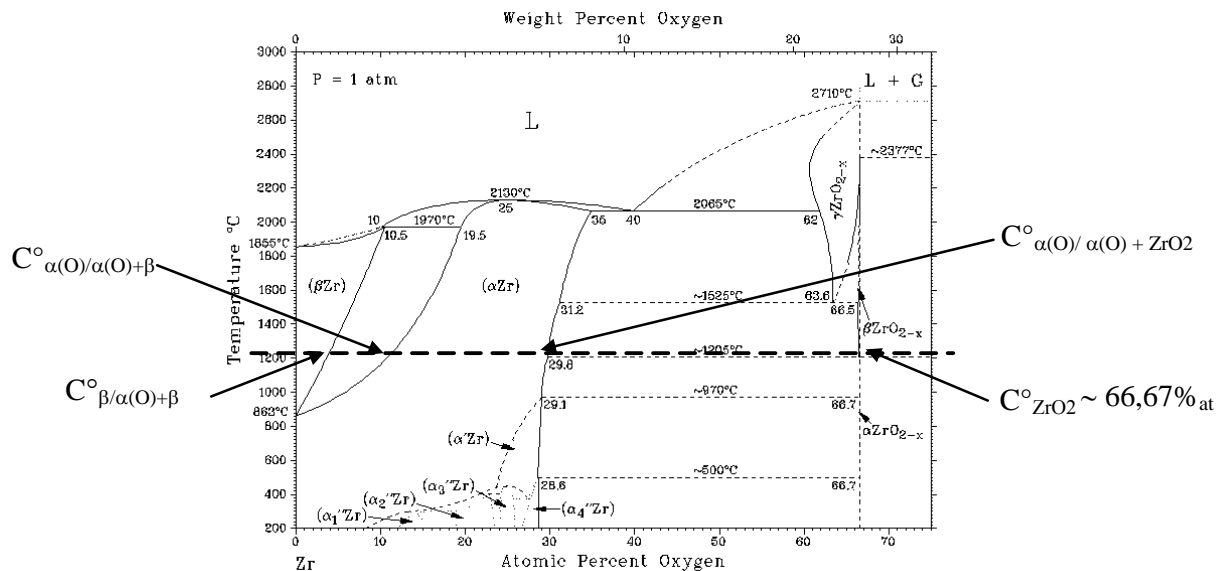


Figure 10 : Diagramme binaire Zr-O à pression atmosphérique (ABRIATA et al., 1986).

D'une façon générale, la teneur locale en oxygène, bornée par les limites de solubilité de l'oxygène dans les différentes phases, est à l'origine du profil d'oxygène qu'on observe dans une gaine oxydée à haute température (Figure 11).

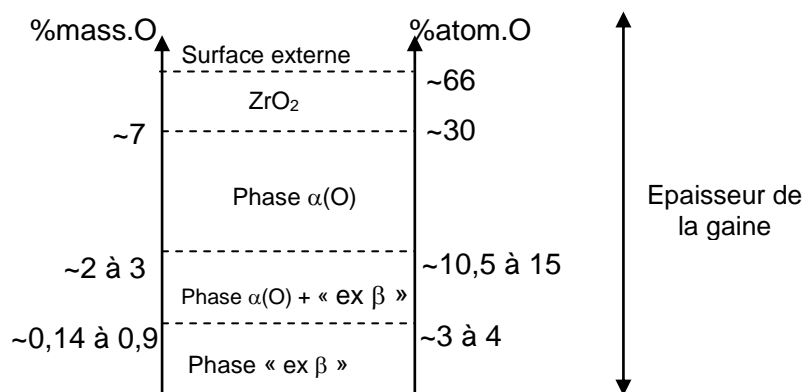


Figure 11 : Profil de concentration en oxygène typique dans la gaine après oxydation HT et trempé.

L'évolution en cours d'oxydation de l'épaisseur des couches, ainsi que du gain de masse dû à la prise d'oxygène, peuvent être décrits à l'aide des courbes de cinétique globale d'oxydation. Une illustration de ces courbes, en général paraboliques pour des temps faibles d'oxydation, est présentée en Figure 12.

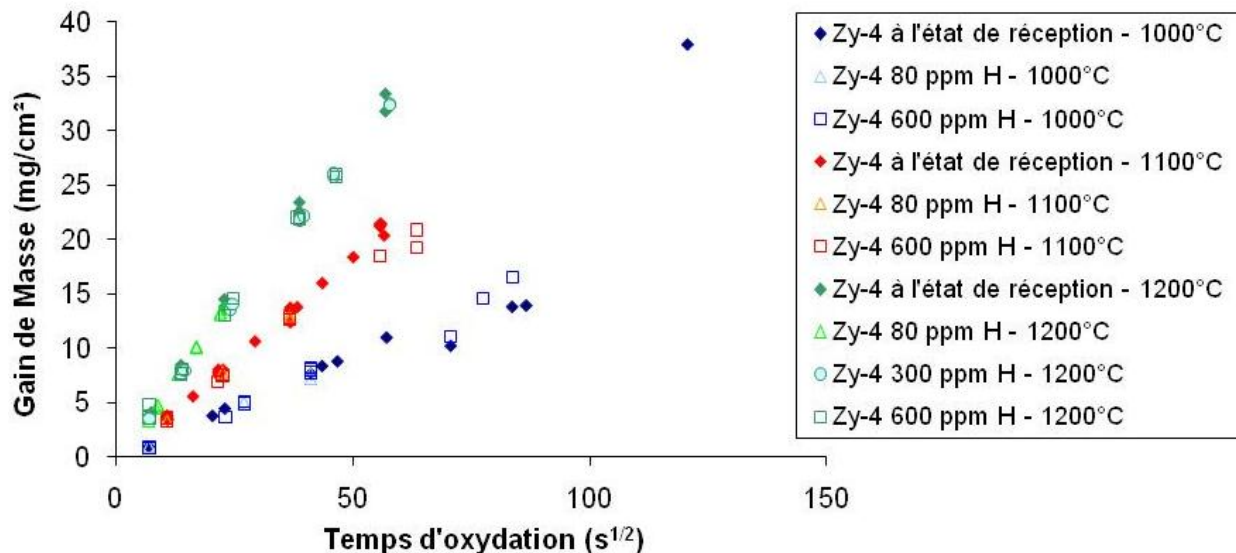


Figure 12 : Cinétiques d'oxydation pour le Zy-4 vierge oxydé à 1000, 1100 et 1200°C (PORTIER et al., 2005).

Pour une température d'oxydation voisine de 1000°C, la cinétique d'oxydation présente une transition d'une dépendance parabolique au temps, à une dépendance linéaire. Cette accélération de la cinétique est accompagnée d'une prise d'hydrogène de la gaine (PORTIER et al., 2005 ; BILLONE et al., 2008). Or, entre 1000 et 1100°C une transformation de phase s'opère dans la couche de zircone : il s'agit de la transformation de la phase monoclinique (stable à basse température) en phase tétragonale (ou quadratique, stable à haute température). Au voisinage de 1000°C, on serait donc en présence d'un « mélange » évolutif des deux phases de zircone dans la couche externe. Cet état microstructural instable est souvent évoqué pour expliquer l'occurrence du phénomène de « breakaway » cinétique observé au voisinage de cette température particulière (SCHANZ et al., 1981 ; LEISTIKOW et al., 1983), ainsi que la prise d'hydrogène qui l'accompagne (PORTIER et al., 2005 ; BILLONE et al., 2008).

Après l'oxydation à haute température le renoyage entraîne la trempe des gaines, à une vitesse de refroidissement estimée de l'ordre de 1000°C/s¹. Suite à la trempe, la gaine comporte schématiquement trois couches : une première couche extérieure de zircone très riche en oxygène (ZrO₂) fragile, une deuxième couche de phase α stabilisée par l'oxygène à haute température ($\alpha(O)$) elle aussi fragile, et une troisième couche interne de phase dite « ex- β » (i.e., phase β transformée en phase α ou α' lors de la trempe) qui peut garder une certaine ductilité. En outre, en cas de prise d'hydrogène significative de la gaine due à la corrosion en service et/ou pendant le transitoire, l'hydrogène a tendance à se concentrer dans cette couche interne ex- β et à la fragiliser (BRACHET et al., 2008). La gaine post-oxydation-trempe, et son profil d'oxygène dans l'épaisseur, sont schématisés sur la Figure 13.

¹ La microstructure résiduelle de la couche ex- β obtenue suite à une trempe à l'eau à température ambiante est nettement plus fine que celle obtenue par STERN (2007) par refroidissement contrôlé en dilatométrie à 100°C/s. La vitesse de trempe à l'eau est alors significativement supérieure à 100°C/s.

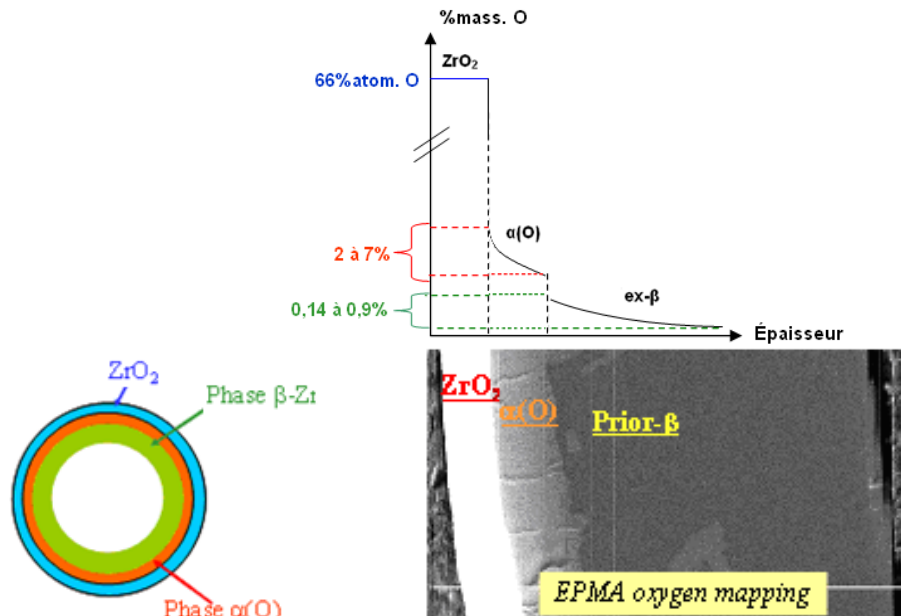


Figure 13 : Représentation schématisée de la gaine post oxydation trempe, illustration par cartographie de l'oxygène obtenue par microsonde électronique (BRACHET et al., 2001).

2.4. La gaine après oxydation à haute température et trempe : caractérisation du matériau stratifié

Nous rappelons que l'objectif de cette thèse est d'analyser les essais de compression d'anneaux réalisés sur gaine oxydée en conditions APRP. Pour comprendre l'essai, il faut d'abord caractériser le matériau. Dans ce paragraphe nous aborderons donc, la préparation des échantillons qui ont servi à mener l'étude, ainsi que la caractérisation détaillée de leurs propriétés et microstructures.

2.4.1. Obtention des échantillons oxydés en conditions APRP

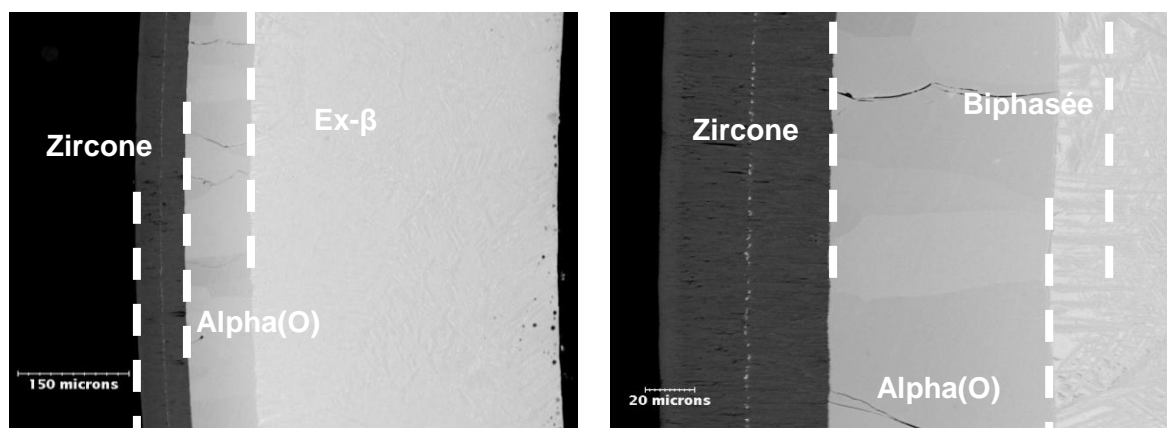
Nous avons déjà vu au paragraphe 2.2.2 que la microstructure du Zircaloy-4 après refroidissement dépend fortement de la vitesse de trempe, mais elle dépend également de la cinétique d'oxydation. Par conséquent, la microstructure dépend des conditions d'oxydation : l'environnement, la température et le temps d'oxydation. Afin d'obtenir des échantillons avec des niveaux d'oxydation et des microstructures différents, des tronçons de gaine en Zircaloy-4 longs de 15 cm ont été préparés selon différentes conditions (temps et température).

Dans la mesure où on s'intéresse à la compréhension de l'essai de compression d'anneaux nous avons évité d'utiliser des conditions pouvant entraîner un « breakaway ». Nous avons également limité les conditions de préparation à celles disponibles avec le dispositif DEZIROX 1. Ce dispositif est composé d'un four vertical résistif qui permet d'avoir un faible gradient de température le long des éprouvettes (+/-10°C à 1200°C sur les 150mm de longueur d'une éprouvette), et une oxydation en ambiance vapeur. Il est équipé d'un bac de trempe contenant de l'eau à température ambiante (BRACHET et al., 2001).

Nous avons donc appliqué quatre préparations différentes, correspondant à quatre conditions d'oxydation. Les échantillons préparés ont été oxydés en simple face (face externe, bouchonnés sous vide) suivant ces conditions, puis trempés directement à l'eau, dans le dispositif DEZIROX 1. L'homogénéité de l'oxydation a été vérifiée par des mesures de diamètre le long de l'éprouvette réalisées par métrologie laser. Une dispersion de 10µm a été considérée comme tolérable.

Le Gain de Masse (GdM) des éprouvettes a été mesuré. Le niveau d'oxydation a été quantifié en utilisant la définition de l'ECR (Equivalent Cladding Reacted). Ce paramètre fait référence au pourcentage de l'épaisseur de la gaine qui serait converti en zircone, si on suppose que tout le gain de masse correspond à de l'oxygène pris pendant l'oxydation, et que tout cet oxygène forme de la zircone stœchiométrique.²

Finalement, des observations en microscopie optique et en Microscopie Electronique à Balayage (MEB - électrons rétrodiffusés) nous ont permis d'identifier les couches : zircone, $\alpha(O)$ et ex- β , en plus d'une zone à l'interface entre les couches $\alpha(O)$ et ex- β qui correspond à une zone « biphasée » (exemple en Figure 14).



Epaisseur complète de la gaine oxydée

Zoom sur les couches externes

Figure 14 : Image MEB en électrons rétrodiffusés, d'une gaine en Zircaloy-4 oxydée 520s à 1200°C, soit un ECR visé de 10%.

Un protocole a été appliqué précédemment à des éprouvettes ayant subi la même préparation que nos quatre cas d'étude (MAILLOT et BRACHET, 2007) pour estimer l'épaisseur des couches correspondant aux conditions d'oxydation ici étudiées. Ce protocole consiste à moyenner les épaisseurs des phases sur 4 zones de la coupe transversale de la gaine. Il est appliqué à l'aide d'un logiciel d'analyse d'images sur une coupe transversale de la gaine ayant subi un polissage mécanique, en s'appuyant sur les critères suivants :

- La zone continue $\alpha(O)$ est présente dans la gaine lorsque : $100\% > \% \alpha(O) > 90\%$
- La zone continue ex- β commence pour : $\% \alpha(O) < 10\%$
- La zone biphasée est définie telle que : $90\% > \% \alpha(O) > 10\%$

Le Tableau 2 résume les conditions de préparation des échantillons (a.), les niveaux d'oxydation atteints (b.), et les épaisseurs des couches estimées qui correspondent à chaque oxydation (c.).

a. Conditions d'oxydation			b. Niveau d'oxydation post-essai		c. Epaisseur des couches estimées			
Température d'oxydation (°C)	Temps d'oxydation (s)	ECR visé (%)	GdM obtenu (mg/cm ²)	ECR obtenu (%)	Epaisseur Zircone (μm)	Epaisseur Alpha(O) (μm)	Epaisseur Biphasée (μm)	Epaisseur Ex-β (μm)
1100	467	6	8,16	6,5	42	39	21	476
	1349	10	8,14	6,3				
1200	520	10	13,09	10,3	74	78	22	420
	1492	17	13,05	10,3	71	85	20	415
			21,03	16,6	113	140	213	135

Tableau 2 : Conditions de préparation des échantillons, niveaux d'oxydation atteints, et épaisseurs moyennes des couches mesurées. ECR obtenu évalué à partir du gain de masse.

² En réalité une partie de l'oxygène diffuse dans le substrat métallique enrichissant la phase bêta en oxygène puis provoquant l'apparition de la phase $\alpha(O)$. De plus la zircone formée est légèrement sous stœchiométrique.

Un essai a été doublé. Compte tenu de la faible dispersion constatée sur le taux d'oxydation, nous utiliserons dans la suite les conditions d'oxydation (temps et température) ainsi que l'ECR visé pour faire référence aux échantillons correspondant aux quatre conditions d'oxydation.

Les microstructures obtenues observées en microscopie optique sont présentées sur la Figure 15. On peut identifier facilement les trois couches (zircone, $\alpha(O)$ et ex- β) sur ces micrographies. Nous pouvons également constater la présence d'incursions de phase $\alpha(O)$ dans la couche ex- β à partir d'un ECR de 10% pour les échantillons oxydés à 1100°C, et à partir de 17% d'ECR pour ceux oxydés à 1200°C. La taille de ces incursions, qui se localisent de préférence aux joints des anciens grains β , définit la zone que nous avons appelée biphasée dans le Tableau 2.

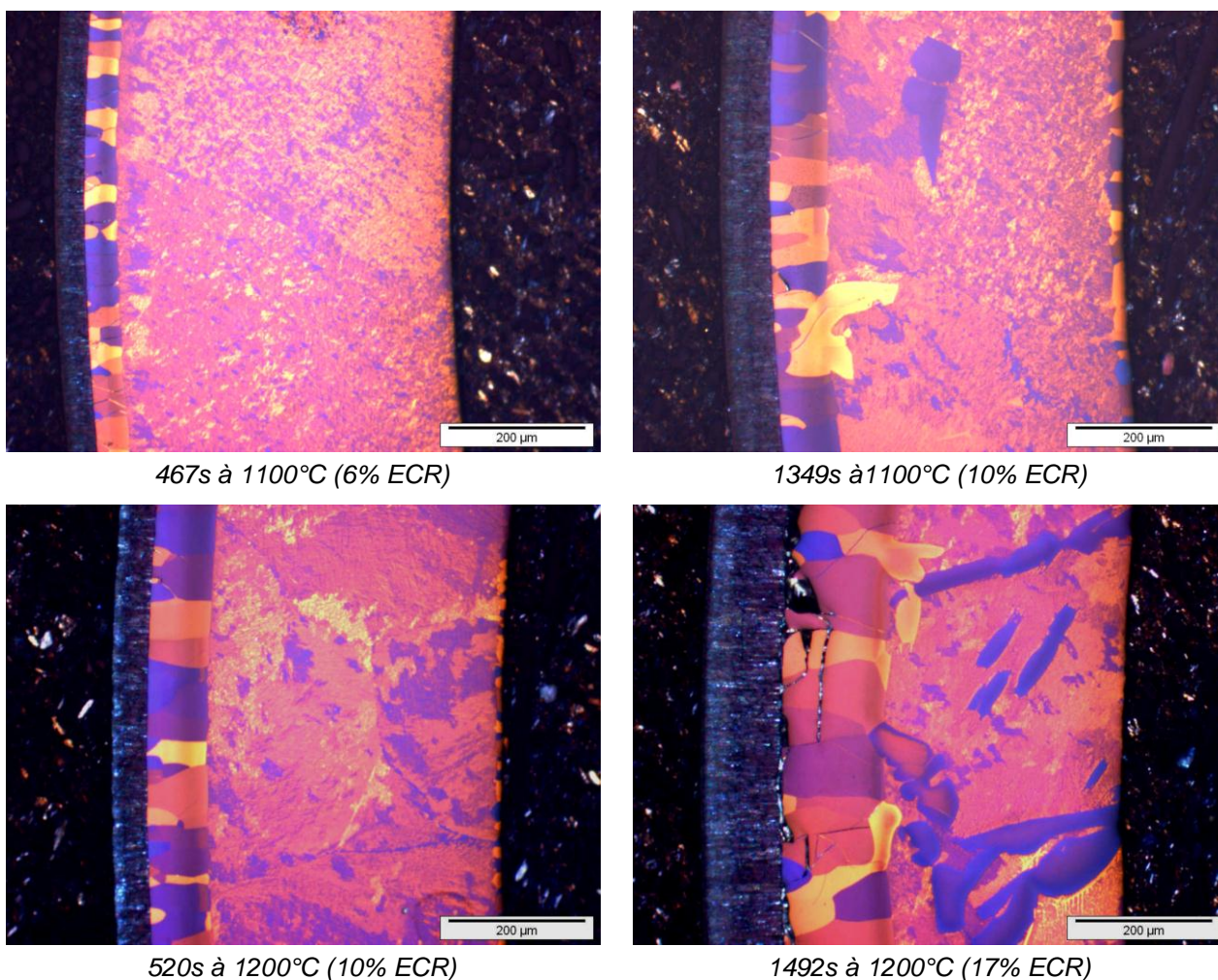


Figure 15 : Microstructures des 4 cas d'oxydation (Zy-4) observées en microscopie optique, en lumière polarisée.

MA et al. (2008) ont utilisé la Microsonde de Castaing pour obtenir des profils d'oxygène au sein des couches métalliques des gaines en Zy-4 oxydées dans les mêmes conditions que celles présentées au Tableau 2. La Figure 16 présente ces profils, tracés à partir de l'interface zircone / $\alpha(O)$.

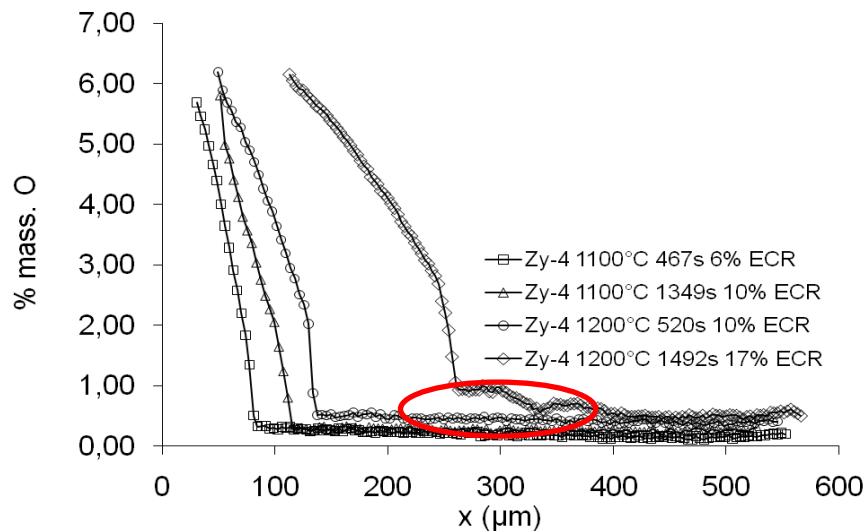


Figure 16 : Profils d'oxygène obtenus par microsonde de Castaing sur des gaines en Zy-4 oxydées selon différentes conditions (MA et al., 2008).

Pour chaque profil, deux zones sont identifiées : la première zone avec des teneurs en oxygène élevées correspond à la couche $\alpha(O)$, très riche en oxygène ; la deuxième zone, moins riche en oxygène, correspond à la couche ex- β . La présence d'incursions de la phase $\alpha(O)$ dans l'ex- β , observée sur les micrographies dans cette étude (Figure 15), a été mise en évidence notamment pour le profil d'oxygène de la gaine oxydée à 17% ECR. Une augmentation localisée de la teneur en oxygène dans la couche de phase ex- β (signalée par le cercle rouge dans la Figure 16) a ainsi été observée.

Pour expliquer la présence d'incursions de la phase $\alpha(O)$ dans l'ex- β , on peut faire référence au mécanisme proposé par BRACHET et al., en 2007 : au cours de l'oxydation à haute température, et à partir du moment où la limite de solubilité de l'oxygène dans la phase β est atteinte dans la couche interne, l'oxygène suivrait les anciens joints des grains β . Ceci entraînerait la germination de ce qu'on a appelé des incursions de phase $\alpha(O)$. Il s'en suivrait un épaissement progressif latéral des incursions par diffusion (Figure 17).

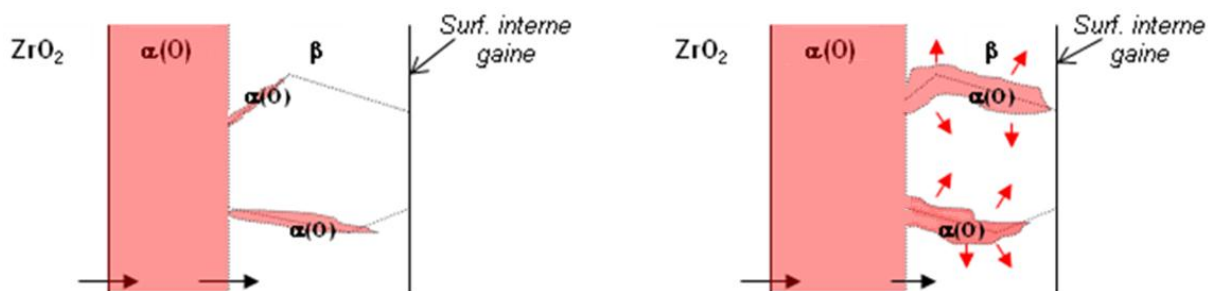


Figure 17 : Représentation schématique du mécanisme d'apparition et d'épaississement des incursions de phase $\alpha(O)$ au sein du liseré ex- β du Zy-4 (BRACHET et al., 2007).

Pour rappel, on a constaté que, lorsque la température d'oxydation augmente, la présence d'incursions de la phase $\alpha(O)$ dans l'ex- β est observée pour des niveaux d'oxydation plus élevés. Pour comprendre la relation entre la présence d'incursions et la température, nous devons faire référence au diagramme d'équilibre pseudo-binaire Zy-4/O établi par CHUNG et KASSNER (1979), présenté sur la Figure 18. On note que la limite de solubilité de l'oxygène dans la phase β du Zy-4 augmente avec la température, ce qui nous amène à penser que la limite de solubilité de l'oxygène dans la phase β est atteinte plus tard pour des températures élevées d'oxydation, retardant ainsi l'apparition des incursions lorsqu'on augmente la température d'oxydation.

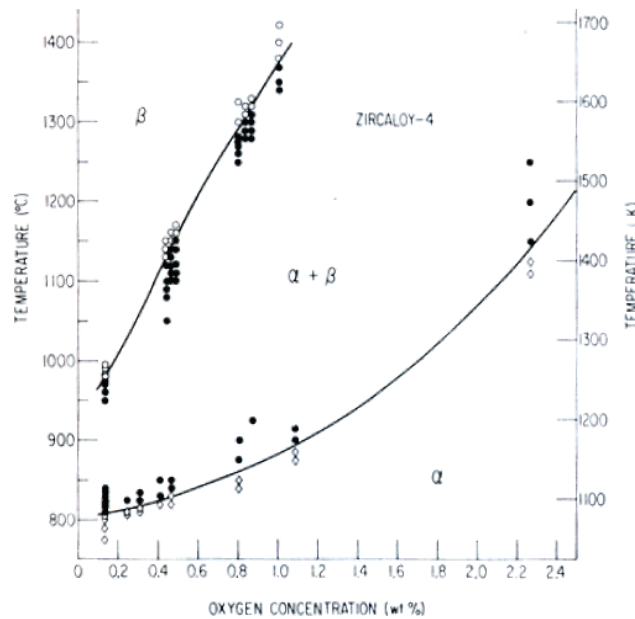


Figure 18 : Diagramme pseudo-binaire Zy-4 – O de Chung et Kassner (1979).

2.4.2. Caractérisation de la gaine stratifiée post-oxydation et trempe

2.4.2.1. Profil de module d'Young de la gaine oxydée

En 1977 BUNNELL et al. ont évalué le module d'Young de gaines chargées en oxygène à différentes teneurs pour une plage de température allant de 20 à 1200°C. Ils ont mesuré la vitesse de propagation du son dans des « allumettes » prélevées dans le sens axial et circonférentiel de la gaine (technique du « thin rod method », en anglais). Ils ont ensuite ajusté des lois d'évolution du module d'Young en fonction de la teneur en oxygène et de la température pour les deux sens de prélèvement séparément. Un article, qui résume les résultats de leur travail a également été publié en 1983, mais les évolutions qui y sont proposées s'éloignent suffisamment des données expérimentales pour qu'on considère qu'il comporte des erreurs dans l'ajustement des lois. Pour cette raison nous avons préféré garder comme référence pour notre travail les lois publiées en 1977, qui sont présentées sur la Figure 19.

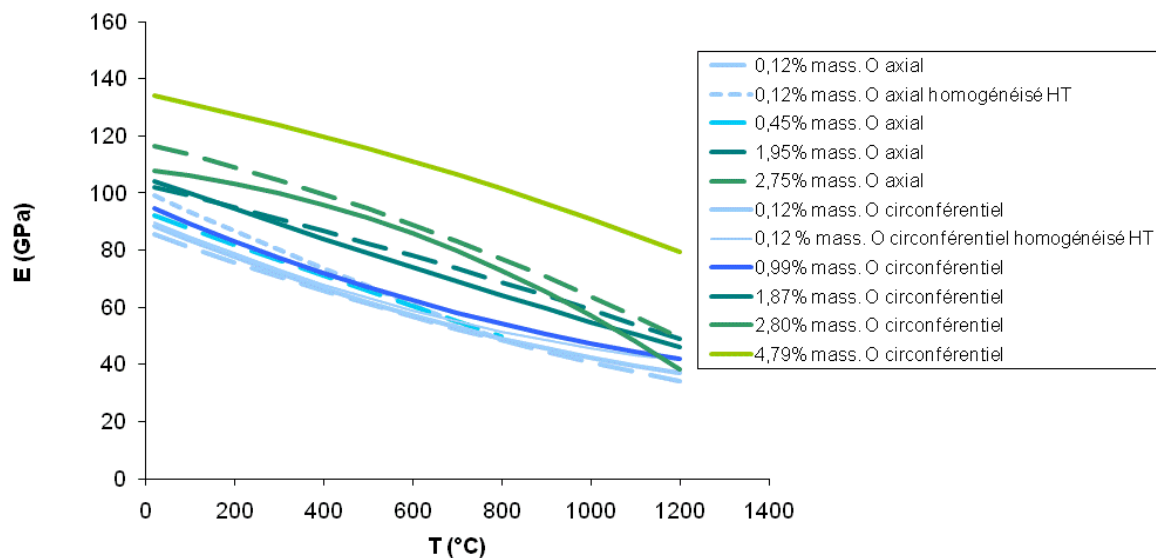


Figure 19 : Evolution du Module d'Young des gaines en Zy-4 chargées en oxygène à différentes teneurs pour une plage de température allant de 20 à 1200°C, selon le sens de prélèvement de l'éprouvette (BUNNELL et al., 1977).

Dans le but initial de vérifier ces lois, en accord avec quelques données obtenues par STERN (2007) par mesures acoustiques, nous avons réalisé des profils de module d'Young par nanoindentation instrumentée à température ambiante sur nos gaines en Zy-4 oxydées. Ces profils ont été réalisés sur des coupes transversales de la gaine, dans son épaisseur (plan (r, θ)). La méthode utilisée, ainsi que les expériences, sont détaillées en Annexe 1.

La Figure 20 présente le profil de module d'Young obtenu pour deux gaines oxydées à un taux de 17% ECR. Cette figure illustre notamment la dispersion observée d'une façon générale sur les résultats obtenus pour la couche de zircone. La structure colonnaire et très fragile de cette couche, étudiée au paragraphe 2.4.2.5, pourrait expliquer cette dispersion.

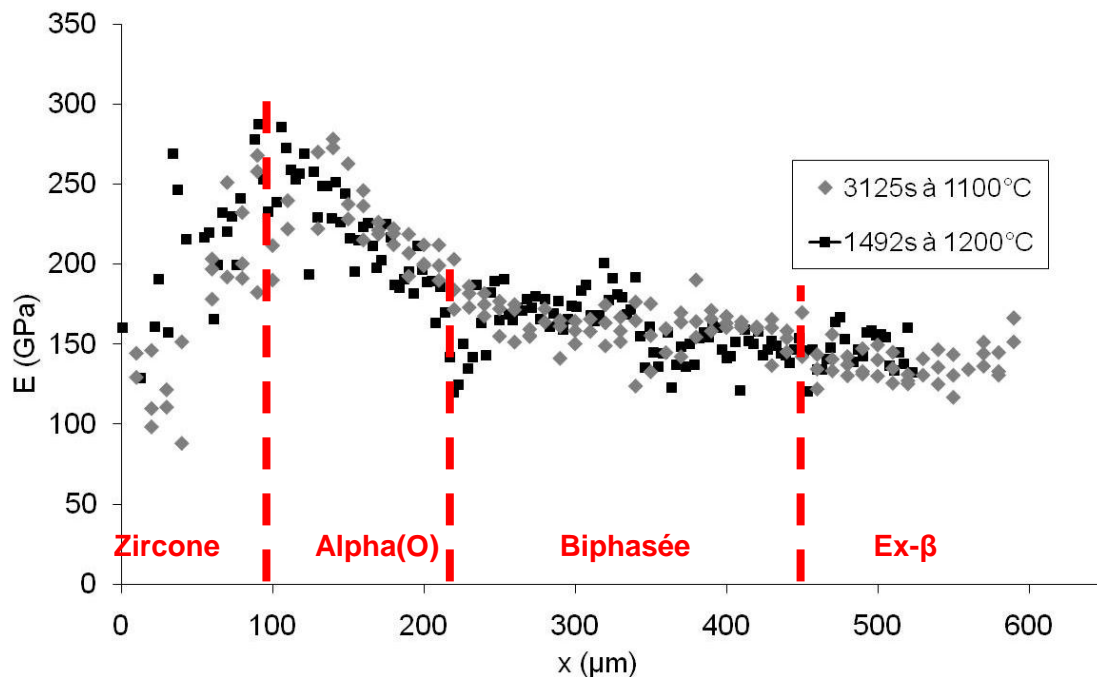


Figure 20 : Profil de module d'Young obtenu par nanoindentation instrumentée (paliers de force du cycle à 3 mN, 5 mN et 8 mN) sur gaine oxydée 3125s à 1100°C et 1492s à 1200°C (17% ECR).

Nous n'aborderons pour la discussion que les résultats obtenus sur les couches métalliques ($\alpha(O)$ et ex- β). L'utilisation de la nanoindentation sur des matériaux métalliques est entachée d'un effet de taille (appelé en anglais Indentation Size Effect- ISE). Cet effet de taille fait que la dureté ou le module d'Young mesurés du matériau augmentent de façon significative lorsqu'on diminue la taille de l'empreinte (RASHID et AL-RUB, 2007 ; DAO et al., 2001 ; BIGERELLE et al., 2007). Il est possible d'ajuster la taille de l'empreinte et la profondeur de pénétration en ajustant la charge à laquelle on réalise l'indentation. Des expériences ont été réalisées afin d'optimiser l'ordre de grandeur des charges utilisées pour obtenir des empreintes suffisamment petites pour pouvoir réaliser un profil dans la couche $\alpha(O)$, en évitant l'effet de taille.

Le profil d'une gaine oxydée pendant 520s à 1200°C (à 10% ECR), puis trempée, a été réalisé en prenant en compte les charges optimisées (taille des empreintes de $\sim 10\mu\text{m}$). La Figure 21 présente les valeurs expérimentales comparées à celles obtenues en utilisant les lois de BUNNELL et al. (1977).

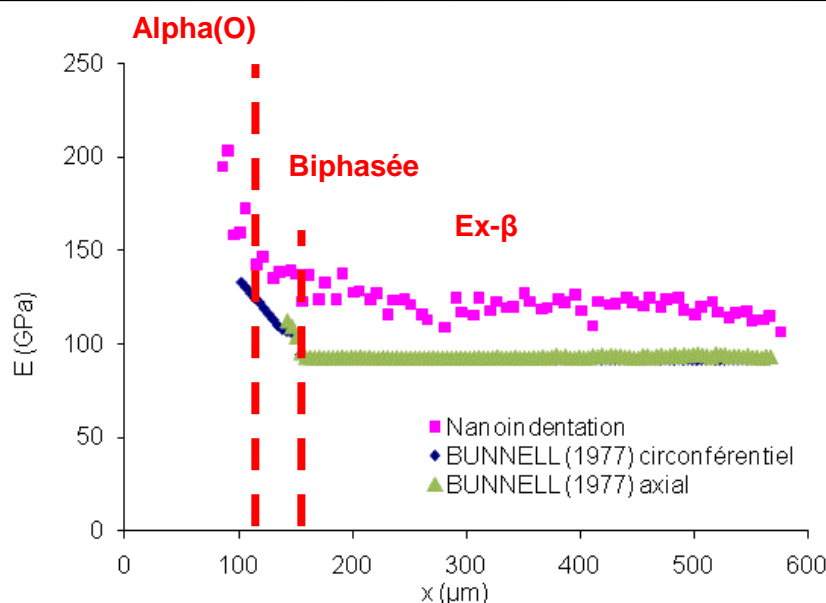


Figure 21 : Profil de module d'Young obtenu par nanoindentation instrumentée (paliers de force du cycle à 30, 50 et 80 mN) le long de l'épaisseur d'une gaine oxydée 520s à 1200°C (10% ECR), comparé aux données de la littérature (BUNNELL et al., 1977).

On observe systématiquement que les valeurs du module d'Young obtenues par nanoindentation sont supérieures d'environ 25% par rapport à la littérature. L'utilisation des mêmes méthodes sur une gaine à l'état de réception nous a permis de constater le même écart entre les valeurs du module d'Young obtenues par nanoindentation (valeur moyenne de 104 GPa) et par les lois de BUNNELL et al. (1977) à partir de la teneur en oxygène (83 GPa et 90 GPa pour un module d'Young évalué dans les sens circonférentiel et axial de la gaine respectivement).

Malgré les efforts réalisés pour optimiser la charge des indentations, l'effet d'échelle intrinsèque à la méthode expérimentale persiste aux charges utilisées, et expliquerait l'écart observé entre les résultats expérimentaux et ceux obtenus à partir de la littérature. On peut conclure qu'il faudrait travailler à des profondeurs d'indentation plus importantes, en faisant des empreintes plus grandes, pour estimer avec plus de précision la valeur du Module d'Young. Or, avec des empreintes plus grandes il n'est pas possible d'accéder au profil du Module d'Young de la couche $\alpha(O)$, la valeur obtenue serait plus proche d'une valeur moyenne.

2.4.2.2. Propriétés de la couche interne ex- β de la gaine oxydée

Dans le cadre de cette étude, seules les microstructures obtenues par oxydation à haute température suivie d'une trempe directe à l'eau à température ambiante ont été examinées. Dans ces conditions, la microstructure de Widmanstätten de la couche ex- β , enrichie ou non en oxygène (entre 0,14 et 0,9% mass. O), se montre particulièrement fine (Figure 22), mais son comportement mécanique dépend fortement de la teneur locale en oxygène.

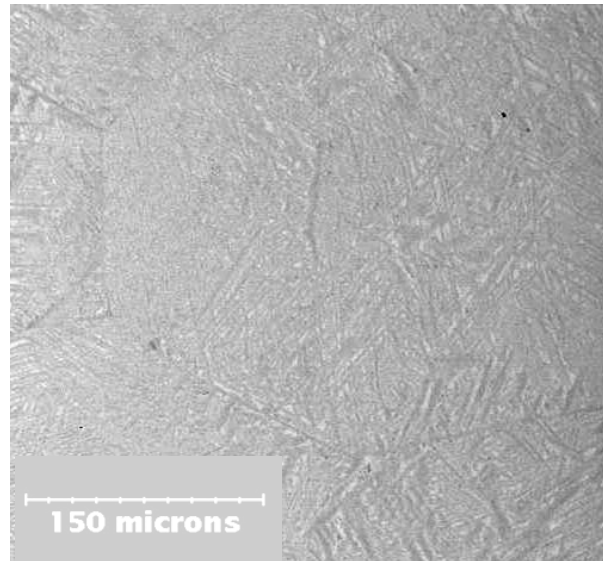


Figure 22 : Image MEB (électrons rétrodiffusés) d'une coupe polie d'une gaine en Zircaloy-4 oxydée 520s à 1200°C, soit un ECR de 10%. Teneur moyenne en O de la couche ex- β de ~0,4% mass. O.

STERN (2007) a mis au point un protocole permettant d'élaborer des échantillons homogènes en Zy-4 chargés à différentes teneurs en oxygène. Son protocole consistait à oxyder des plaquettes en Zy-4 à haute température et en ambiance vapeur (conditions APRP), puis à les homogénéiser sous vide, et les tremper. Les matériaux modèles obtenus en phase ex- β (0,14 à 0,9% mass. O) ont été testés par traction à différentes températures.

Suite à ses expériences, STERN (2007) a attribué à la phase ex- β trempée un comportement élastique-fragile ou élasto-plastique (rupture ductile) en fonction de la teneur en oxygène et de la température de sollicitation. Il a défini deux lois pour caractériser les deux types de comportement, ainsi que le domaine (teneur en oxygène et température de sollicitation) pour lequel chacune des lois est valide (Figure 23).

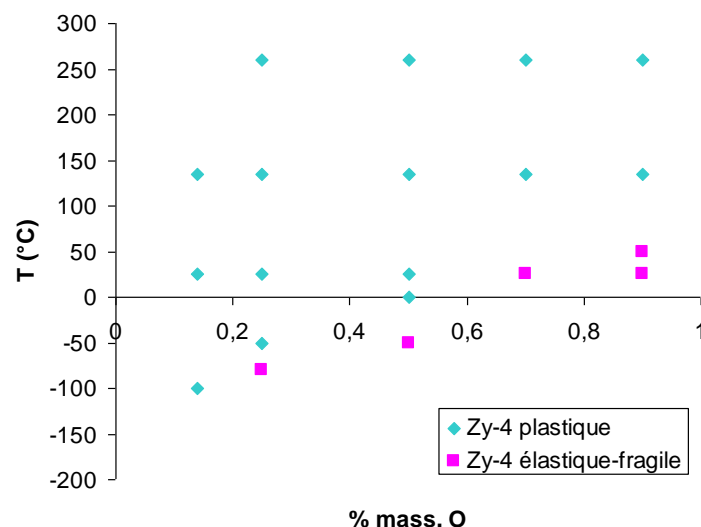


Figure 23 : Domaines d'application (concentration en oxygène et température d'essai) des lois de comportement élastique-fragile et élasto-plastique de la phase ex- β (STERN, 2007).

En supposant le matériau isotrope, il s'est servi de l'évolution du module d'Young suggérée par BUNNELL et al. (1977), citée dans le paragraphe 2.4.2.1, et d'un coefficient de Poisson d'une valeur de 0,35 pour décrire le comportement élastique commun aux deux domaines. Il a proposé également de décrire le comportement plastique de la phase ex- β à l'aide d'une loi de type Ludwik, de la façon suivante :

$$\sigma = \begin{cases} E \varepsilon & \text{si } \sigma < \sigma_y \\ \sigma_y + K(\varepsilon^p)^n & \text{si } \sigma \geq \sigma_y \end{cases}$$

Où	σ	Contrainte équivalente de Von Mises
	ε^p	Déformation plastique correspondante
	σ_y	Limite d'élasticité
	K	Résistance plastique
	n	Coefficient indicatif d'écrouissage (différent du coefficient d'écrouissage)

L'évolution de ces paramètres en fonction de la concentration en oxygène C_O (%mass. O) et de la température T (°C) a été définie à l'aide de l'expression suivante :

$$a + bC_O + cT + dC_O^2 + eT^2 + fC_OT$$

À partir des coefficients regroupés dans le Tableau 3 :

Paramètre	<i>a</i>	<i>b</i>	<i>c</i>	<i>d</i>	<i>e</i>	<i>f</i>
σ_y (MPa) ³	709,9	-103,67	-1,09	5,31	-1,8 E-03	0,88
K (MPa)	91,9	731,77	-0,067	-479,79	-1,2 E-03	-0,825
n	0,15	0	0	0	0	0

Tableau 3 : Coefficients des relations décrivant les évolutions en fonction de la concentration en oxygène et de la température des paramètres de la loi de Ludwik de la phase ex-β du Zy-4 pour des concentrations en oxygène comprises entre 0,14 et 0,9% mass. O et des températures comprises entre -100°C et 260°C.

STERN (2007) a aussi proposé d'exprimer l'évolution de la contrainte à rupture pour le comportement fragile, et de la contrainte maximale lorsque le comportement est ductile, de la phase ex-β. L'évolution a été établie à partir de la relation déjà mentionnée. Les valeurs des coefficients identifiés sont rassemblées dans le Tableau 4.

Domaine de comportement	Paramètre	<i>a</i>	<i>b</i>	<i>c</i>	<i>d</i>	<i>e</i>	<i>f</i>
Plastique	R_m (MPa)	407,7	1653,71	-1,16	-1270,93	4,3 E-04	-0,832
Élastique-Fragile	R_u (MPa)	288,5	253,31	6,96	-222,17	0,12	-12,15

Tableau 4 : Coefficients des relations décrivant la contrainte à rupture (en MPa) des éprouvettes présentant un comportement élastique-fragile, et de la contrainte maximale (en MPa) des éprouvettes ductiles, en fonction de la concentration en oxygène et de la température d'essai de la phase ex-β du Zy-4 pour des concentrations en oxygène comprises entre 0,14 et 0,9% mass. O et des températures comprises entre -100°C et 260°C.

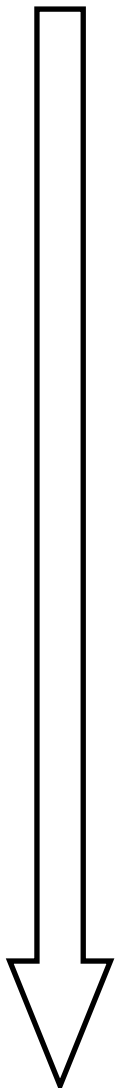
STERN (2007) a aussi montré que la microstructure devient d'autant plus grossière que la teneur en oxygène est élevée. Il a aussi observé, pour des teneurs en oxygène supérieures à 0,25% mass. O, un phénomène de fluctuation de la teneur locale en oxygène entre des lamelles voisines

³ Coefficients réajustés dans le cadre de notre étude pour une meilleure représentation des résultats expérimentaux.

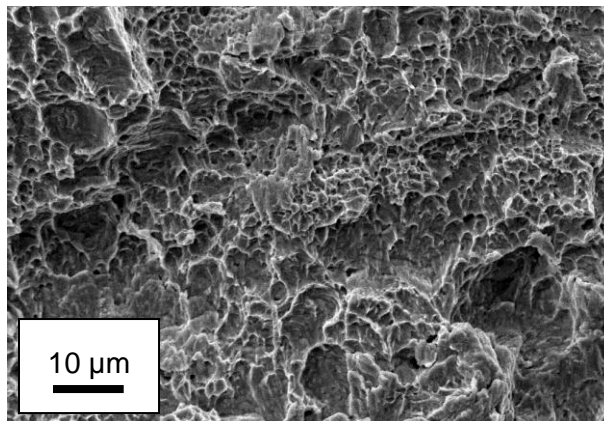
(lamelles enrichies en oxygène à côté des lamelles appauvries). Il a corrélé cette répartition de l'oxygène avec le mode local de rupture. Il a ainsi proposé un mécanisme de rupture fragile macroscopique pour des teneurs supérieures ou égales à 0,5% mass. O, qui consiste en un amorçage fragile au sein des lamelles enrichies suivi d'un déchirement ductile des ligaments appauvris. BRACHET et al. (2008) ont pour leur part mis en évidence la transition ductile/fragile autour de 0,4% mass. O à température ambiante.

Dans le cadre de notre étude, des fractographies des faciès de rupture ont été réalisées post-essai de compression d'anneaux (à température ambiante) sur gaines oxydées et trempées. La microstructure observée a été corrélée avec la teneur locale en oxygène estimée par microsonde de Castaing. Ces expériences nous ont permis de retrouver l'évolution du mécanisme de rupture de la phase ex- β suggérée par STERN (2007) et BRACHET et al. (2008). La Figure 24 illustre ce phénomène.

**Rupture
ductile**



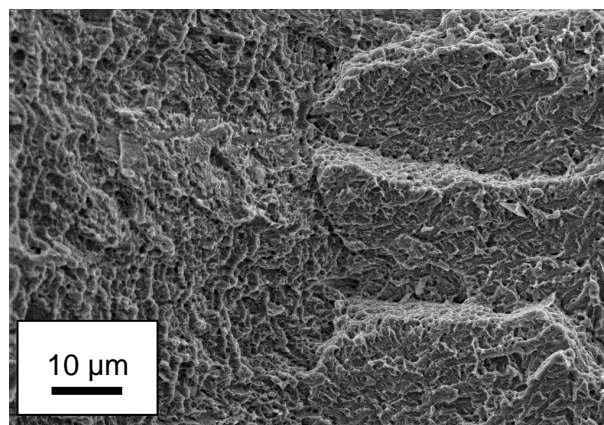
**Rupture
fragile**



Couche ex- β d'une gaine en Zircaloy-4 oxydée 467s à 1100°C ECR de 6%

Teneur locale en oxygène estimée :

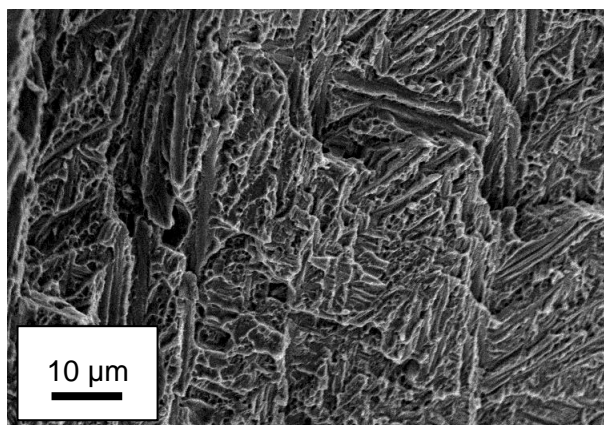
0,2% mass. O



Couche ex- β d'une gaine en Zircaloy-4 oxydée 520s à 1200°C ECR de 10%

Teneur locale en oxygène estimée :

0,4% mass. O



Couche ex- β d'une gaine en Zircaloy-4 oxydée 1492s à 1200°C ECR de 17%

Teneur locale en oxygène estimée :

0,6% mass. O

Figure 24 : Evolution du mécanisme de rupture à température ambiante en fonction de la teneur locale en oxygène, pour la couche ex- β des gaines en Zy-4 oxydées et trempées à l'eau à température ambiante.

Afin de vérifier l'hypothèse d'isotropie de cette couche de la gaine oxydée et trempée, nous avons entrepris de d'évaluer par la technique de diffraction des neutrons, disponible au CEA, la texture de la couche ex- β . Dans le cadre d'une collaboration, nous avons utilisé le diffractomètre 6T1 du laboratoire LLB, avec la participation dans l'expérience de M.H. MATHON et J.L. BECHADE. Cette expérience (Annexe 2) a été menée sur deux échantillons sous forme d'un tronçon de gaine : le premier échantillon a été oxydé 467s à 1100°C (6% ECR) et sablé par la suite afin d'enlever les couches externes de zircone et $\alpha(O)$; le deuxième, a été oxydé 1349s à 1100°C (10% ECR) et n'a pas subi de sablage. La teneur en oxygène moyenne de la couche ex- β de ces deux échantillons est de 0,2 et 0,275% mass. O respectivement. Les figures de pôles obtenues sont les mêmes pour les couches ex- β des échantillons ayant subi les deux préparations, et sont présentées dans la Figure 25, suivant un repère où la direction axiale de la gaine correspond au centre de la figure de pôles :

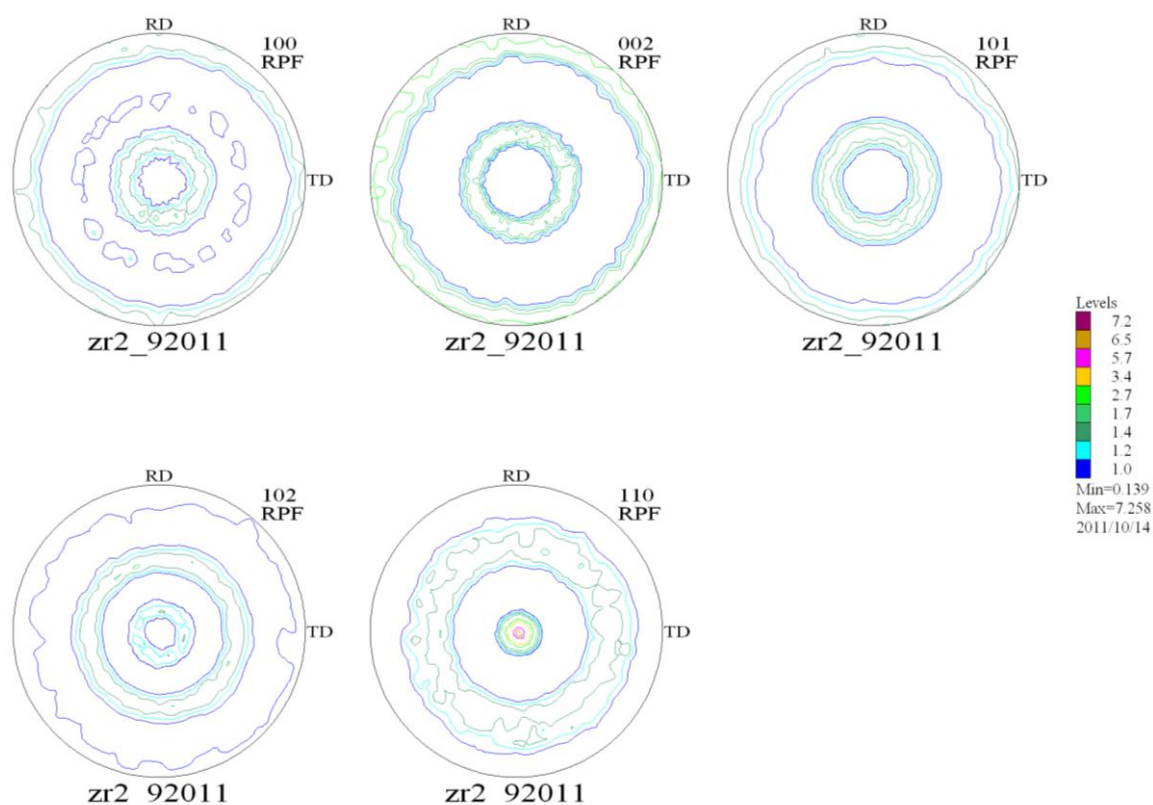


Figure 25 : Figures de pôles obtenues par diffraction de neutrons sur la couche ex- β de deux gaines oxydées en conditions APRP (la direction axiale de la gaine correspond au centre de la figure de pôles).

On observe que la couche ex- β présente une texture de type « texture de fibre », et que les normales au plan (11.0) sont orientées très fortement suivant l'axe de la gaine. Les plans (00.2) sont en périphérie de la figure de pôles, et à environ 30° de la direction normale au plan de l'échantillon (des nouveaux variants apparaissent suite à la transformation de phase $\alpha \Rightarrow \beta \Rightarrow \alpha$ mais pas suffisamment pour rendre la texture isotrope). Les facteurs de Kearns ont une valeur proche de 1/3, ce qui signifie que malgré la forte texturation, le comportement élastique de la couche ex- β serait isotrope. Ces observations sont en accord avec les observations réalisées par BECHADE (2010) sur la couche ex- β des gaines qui ont été oxydées 50s à 1000°C et trempées (teneur moyenne de 0,14% mass. O dans la couche). Cet auteur a également étudié la texture des tôles laminées à froid ayant subi le même traitement, qui s'avère, elle, avoir une texture quasi isotrope.

2.4.2.3. Comportement mécanique de la phase ex-β chargée en oxygène et en hydrogène

L'étude du comportement mécanique de la phase ex-β chargée en oxygène et en hydrogène a été faite par une étudiante en formation en alternance (M1 et M2), dont le co-encadrement a fait partie intégrante des travaux de thèse ici présentés. Un résumé de ce travail est présenté en Annexe 3. Ce travail est également présenté en détail dans le rapport de stage (JESSON, 2011).

JESSON (2011) a appliqué le protocole d'oxydation mis au point par STERN (2007) sur des plaquettes en Zy-4 pré-hydrurées sous flux de vapeur d'argon et d'hydrogène chez AREVA CEZUS. Ces plaquettes ont été oxydées à haute température en ambiance vapeur (conditions APRP), puis homogénéisées sous vide et trempées. Les matériaux modèles de phase ex-β chargée en oxygène et hydrogène ainsi obtenus ont subi de nombreux contrôles d'homogénéité. Ils ont été testés par la suite en traction à différentes températures. Dans le cadre de son travail elle a inclus les résultats bruts des expériences similaires menées par STERN (2007) afin d'obtenir une loi pour décrire le comportement plastique du matériau oxydé avec ou sans hydrogène.

JESSON (2011) a vérifié l'effet fragilisant et durcissant de l'oxygène signalé par STERN (2007) auparavant. Elle a aussi mis en évidence la transition ductile/fragile du Zy-4 à température ambiante vers 400ppm H et 0,25% mass.O. Finalement, elle a formulé une loi avec écrouissage de type Ludwik, pour décrire le comportement plastique du matériau. Les paramètres de la loi ont été définis en fonction de la concentration en oxygène C_O (%mass. O), de la température T (°C) et de la teneur en hydrogène C_H (ppm) de la forme suivante :

$$n = 0,0008T - 0,7945C_O + 0,3346$$

$$K \text{ (MPa)} = -770,21C_O + 0,2211C_H + 488,12$$

$$R_{p0,2} \text{ (MPa)} = 953,11C_O - 2,0066T + 675,95$$

Hormis l'introduction de l'hydrogène comme paramètre d'étude, la loi de comportement proposée par JESSON (2011), diffère de celle de STERN principalement à cause du fait qu'elle ne considère pas le coefficient indicatif d'écrouissage « n » comme étant constant.

Le domaine de validité de cette loi correspond à :

$$0 < C_H < 400 \text{ ppm}$$

$$C_O < 0,30\% \text{ mass. O}$$

$$25^\circ\text{C} < T < 135^\circ\text{C}$$

2.4.2.4. Propriétés de la couche α(O)

Après oxydation à haute température et trempe des gaines, la couche intermédiaire α(O), très riche en oxygène (entre ~2 et 7% mass. O), est composée de grains dont la taille correspond généralement à l'épaisseur de la couche. Des fractographies des faciès de rupture de la couche α(O) post-essai de compression d'anneaux sur gaine oxydée et trempée nous ont permis de vérifier que cette couche montre, à température ambiante, une rupture fragile inter-granulaire et intra-granulaire, où le mécanisme principal de rupture exhibé est le clivage (Figure 26a.). Nous avons également constaté la présence de clivage suivant deux directions superposées, voire plus rarement trois directions superposées (Figure 26b.).

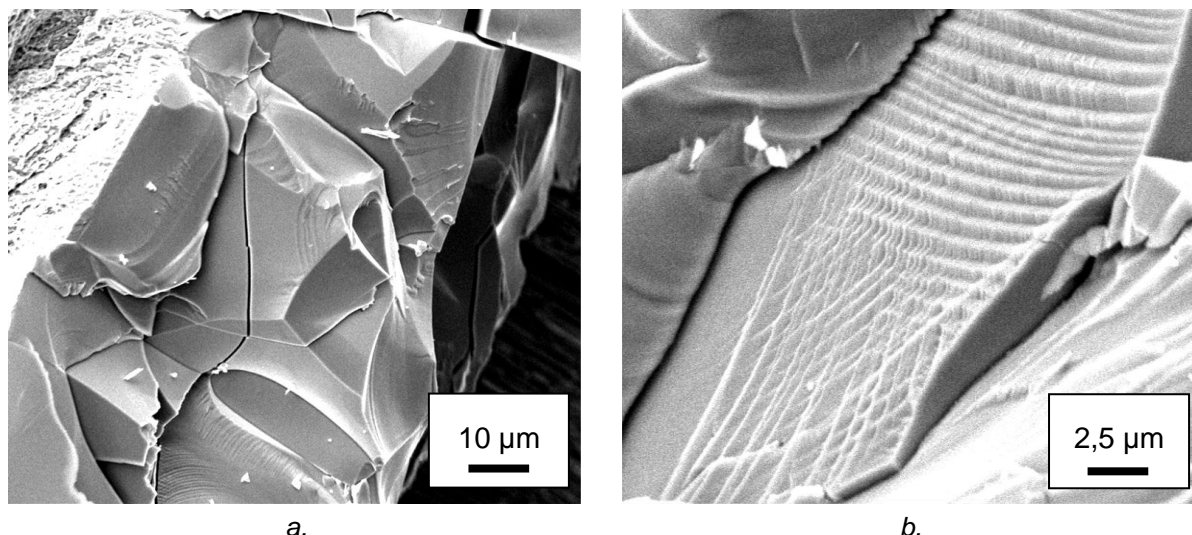


Figure 26 : Fractographies des faciès de rupture de la couche $\alpha(O)$ post-essai de compression d'anneaux sur une gaine oxydée 520s à 1200°C (ECR de 10%) et trempée.

STERN (2007) a aussi étudié le comportement de la phase $\alpha(O)$. Il a testé des matériaux modèles sous forme de plaquettes chargées à 2 et 4% mass. O par flexion 4 points, à 25 et 135°C. Il a attribué à la phase $\alpha(O)$ une loi de comportement élastique fragile isotrope, et l'a décrite à partir de l'évolution du module d'Young proposée par BUNNELL et al. (1977), citée dans le paragraphe 2.4.2.1, d'un coefficient de Poisson d'une valeur de 0,35, et de la contrainte à rupture déduite des essais de flexion 4 points. L'équation suivante représente l'évolution de la contrainte à rupture en fonction de la concentration en oxygène (Co , entre 2 et 4% mass.) et de la température de l'essai (T , entre 20°C et 135°C) pour décrire le comportement mécanique de la phase $\alpha(O)$:

$$Rm \text{ (MPa)} = 148,5 - 28,8Co + 0,002T^4$$

Afin de vérifier l'hypothèse d'isotropie du matériau constituant la gaine oxydée et trempée, nous avons entrepris de réaliser une cartographie EBSD de la coupe transversale de la gaine triphasée, post-oxydation et trempe. A cause des difficultés imposées par la préparation de la surface d'un échantillon stratifié avec des couches ayant des propriétés très différentes, nous n'avons réussi à indexer que la couche $\alpha(O)$. Nous avons utilisé un pas de 5μm pour réaliser l'indexation de quatre clichés (de 1mm de longueur chacun) sur une gaine oxydée 1349s à 1100°C trempée à l'eau (ECR de 10%) dans un MEB à filament de tungstène. Les figures de pôles des axes c (0001), des axes a (11.0), et des plans prismatiques (10.1) pondérées avec la taille des grains, ainsi que la figure de pôles inverse, sont présentées respectivement en Figure 27 et Figure 28.

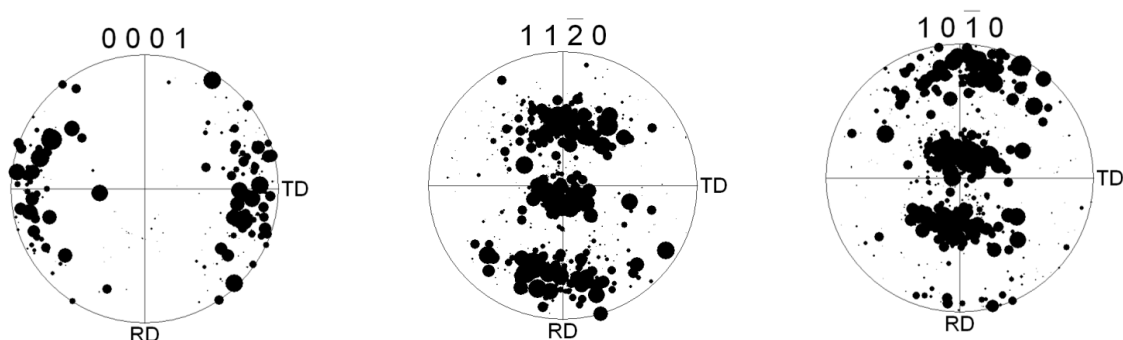


Figure 27 : Figures de pôles obtenues par cartographie EBSD des axes c (00.1), des axes a (11.0), et des plans prismatiques (10.0) pondérées avec la taille des grains de la couche $\alpha(O)$ d'une gaine oxydée 1349s à 1100°C trempée à l'eau (ECR de 10%).

⁴ Coefficients réajustés dans le cadre de notre étude pour une meilleure représentation des résultats expérimentaux.

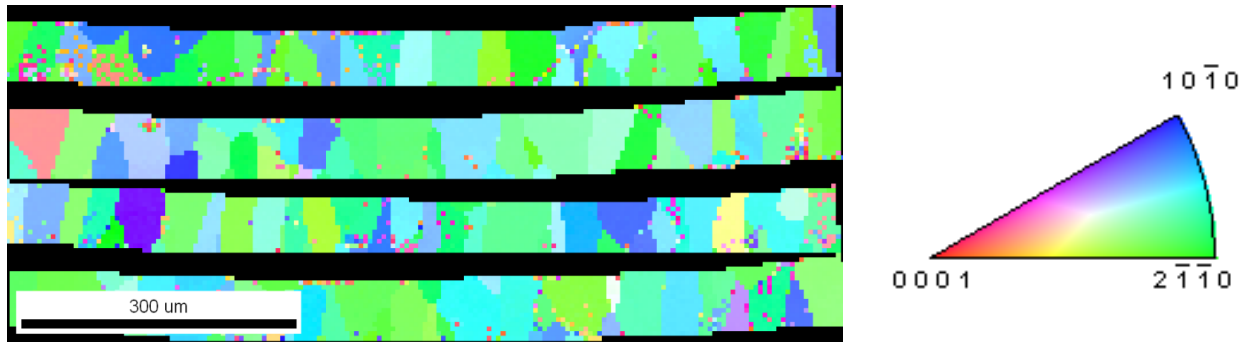


Figure 28 : Figure de pôles inverse obtenue par cartographie EBSD de la couche $\alpha(O)$ d'une gaine oxydée 1349s à 1100°C trempée à l'eau (ECR de 10%).

Ces images nous permettent de constater que la couche $\alpha(O)$ est fortement texturée. En effet, les axes c du réseau hexagonal sont orientés de façon perpendiculaire à l'axe de la gaine, comme illustré en Figure 29.

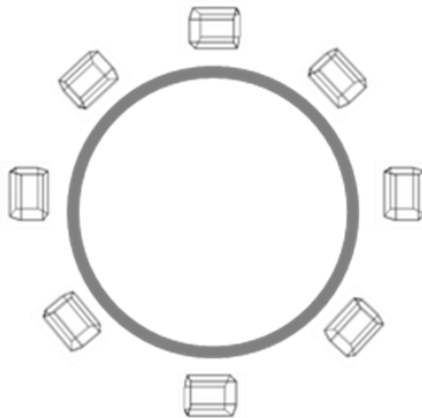


Figure 29 : Schéma de l'orientation du réseau cristallin de la couche $\alpha(O)$ d'une gaine oxydée à haute température et trempée.

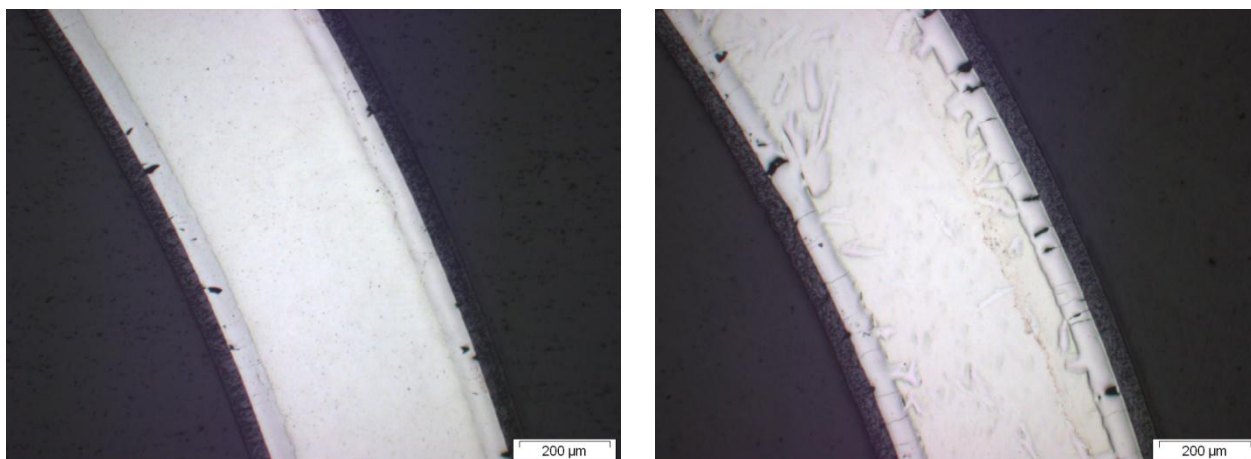
La texture observée pourrait être reliée à un mécanisme d'accommodation pendant la germination des grains de phase α stabilisée par l'oxygène, à un stade précoce de l'oxydation. En effet, l'oxyde conduisant à une expansion volumique par rapport au métal qui lui a donné naissance, les premiers grains de phase $\alpha(O)$ qui se forment (simultanément à la germination de la couche d'oxyde) sont mis en tension dans un plan tangent à la surface externe de la gaine. Sachant que, comme observé de par le passé (BRACHET et al., 1998 ; FRECHINET, 2001) sur des échantillons polycristallins texturés, la transformation $\beta \rightarrow \alpha$ conduit à une dilatation beaucoup plus marquée dans la direction c de la maille hexagonale alors qu'elle est quasi-nulle (voir correspondant à une légère contraction) dans la direction a, il paraît logique que les axes c des cristaux α - qui germent à partir de la phase β - aient tendance à se retrouver tangents à l'interface métal/oxyde pour accommoder au mieux l'expansion volumique due à la zircone.

La forte texturation observée sur cette couche nous amène aussi à nous questionner sur l'anisotropie élastique et thermique du Zy-4 en phase α , à l'échelle du cristal. En absence de données dans la littérature pour le Zy-4 enrichi en oxygène, nous nous sommes intéressés au comportement du zirconium pur. CHUNG et BUESSEM (1967) ont présenté dans leurs travaux le degré d'anisotropie élastique du cristal de Zr : $A^* = 0,07^5$. FISHER et RENKEN (1964) ont pour leur part présenté les coefficients de la matrice de rigidité du cristal de Zr : $c_{11} = 1,434$; $c_{33} = 1,648$; $c_{44} = 0,320$; $c_{66} = 0,353$; $c_{13} = 0,653$ et $c_{12} = 0,728$. La valeur du degré d'anisotropie élastique proche de zéro, ainsi que des coefficients qui s'approchent des hypothèses d'une matrice isotrope sont des indicateurs d'un matériau dont le comportement est proche de l'isotropie élastique.

⁵ Le degré d'anisotropie élastique A^* est une valeur qui mesure l'anisotropie élastique d'un cristal, et donne la magnitude relative de son anisotropie réelle. A^* a une valeur de zéro pour les cristaux avec élasticité isotrope.

D'autre part, MECHLIN (1951), puis COUTERNE et CIZERON (1969), ont mis en évidence une forte anisotropie de la dilatation thermique du cristal de zirconium pur. Ils ont estimé les coefficients de dilatation thermique (entre 20 et 400°C) dans le repère hexagonal compact à $\alpha_c \sim 9$ à $10,3 \cdot 10^{-6}/K$ et $\alpha_a \sim 4,5$ à $5,5 \cdot 10^{-6}/K$ respectivement, soit un écart d'environ 50% suivant les deux directions.

Dans le cadre de notre étude, nous avons observé aussi, en microscopie optique, le déchaussement de certains grains entiers de la couche $\alpha(O)$, ainsi qu'une forte fissuration de celle-ci. En considérant que le polissage et la création d'une surface libre par la coupe transversale de la gaine pourrait jouer sur la fissuration, nous avons voulu comparer des micrographies obtenues suite aux polissages manuels réalisés par deux opérateurs avec des niveaux d'expérience différents (Figure 30).



Opérateur expérimenté Opérateur peu expérimenté
Figure 30 : Illustration de la fissuration de la couche $\alpha(O)$, et du déchaussement de quelques grains suite au polissage sur une gaine oxydée 187s à 1200°C en double face.

Ces observations nous ont permis de constater que la couche $\alpha(O)$ est fissurée (fissures radiales) quels que soient l'opérateur et les précautions prises pour réaliser le polissage. Nous avons également constaté que le taux de fissuration de la couche $\alpha(O)$ dépend de l'expérience de l'opérateur qui réalise le polissage manuel.

La trempe de la gaine aurait pour conséquence d'introduire des contraintes qui pourraient être suffisamment élevées pour entraîner une fissuration de la couche $\alpha(O)$, permettant ainsi de garder l'équilibre au sein du matériau stratifié. Néanmoins, il est difficile d'affirmer, à partir de ces seules observations, que les fissures observées dans la couche $\alpha(O)$ résultent de la trempe (et pas de la préparation des échantillons).

2.4.2.5. Propriétés de la zircone

La littérature sur les propriétés de la zircone résultant de l'oxydation du Zy-4 à haute température est rare. Pour cette raison, nous nous sommes d'abord tournés vers l'étude de la zircone pure pour comprendre son comportement. Dans le diagramme de phases Zr-O présenté dans la Figure 10, on observe que sous pression atmosphérique, deux phases solides sont principalement identifiées pour la zircone. La première phase, tétragonale $\langle\beta\rangle$, est stable entre 1205 et 2377°C pour la zircone pure. À 1205°C, elle devient instable et se transforme en zircone monoclinique $\langle\alpha\rangle$ suite à une transformation martensitique qui entraîne un cisaillement de 9° et une dilatation volumique d'environ 3,5% (Figure 31). Cette discontinuité du volume a été mise en évidence par SIMEONE et al. (2003) et KISI et al. (1998). Cette même transformation de la zircone (tétragonale \Rightarrow monoclinique) a lieu à une température inférieure de $\sim 200^\circ C$ pour la zircone obtenue par l'oxydation du Zy-4 (BRACHET et al., 2003).

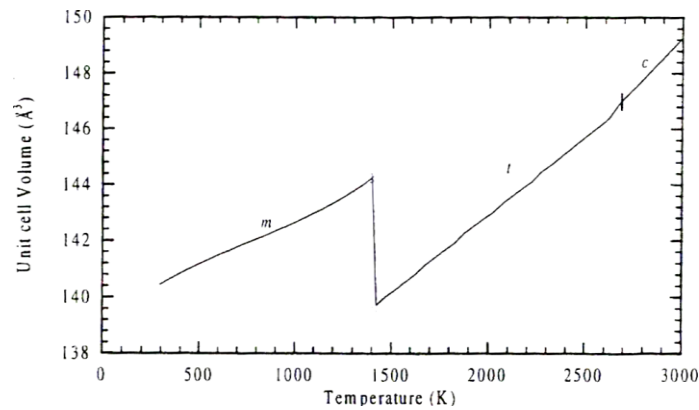


Figure 31 : Volume unitaire de la maille en fonction de la température, pour la zircone pure (KISI et al., 1998).

En ce qui concerne les paramètres intrinsèques pouvant perturber les conditions de transformation de phases à pression atmosphérique, KISI et al. (1998), et BALDINOZZI et al. (2003) signalent que, quand la taille de grain de la zircone est suffisamment petite (de l'ordre de 300Å), la contribution de l'énergie de surface à l'énergie libre devient suffisamment importante pour stabiliser la phase tétragonale, même à température ambiante.

Dans le cadre de ce travail, une expérience de diffraction de rayons X a été réalisée à température ambiante pour tenter d'identifier les phases produites lors de l'oxydation d'une gaine en Zy-4 en conditions APRP suivie d'une trempe à l'eau (Annexe 4). Nous avons effectué des analyses de fragments de zircone naturellement écaillés puis broyés à la main (pour s'affranchir des effets de texture) des tubes oxydés 1492s à 1200°C (ECR de 17%) sur une installation de diffraction X « CPS-120 ». Nous avons observé que les paramètres de maille sont, dans la limite des incertitudes, identiques à ceux caractéristiques d'une zircone monoclinique pure (Tableau 5), si bien qu'on peut caractériser la cristallographie comme étant celle qu'on trouve dans la littérature pour de la zircone pure. Nous avons également constaté que les particules diffractant ont une taille de l'ordre de 1000 Å, valeur qui est proche de la limite en dessous de laquelle une fraction notable de zircone tétragonale pourrait être stabilisée du fait des tensions de surface. Nous pouvons ainsi conclure que ni le niveau des éventuelles contraintes résiduelles, ni la taille des particules (BALDINOZZI et al., 2003, KISI et al., 1998), ni la concentration en éléments d'addition (principalement Sn dans le Zy-4) ne permettent de stabiliser la phase tétragonale à température ambiante.⁶

Paramètres (maille monoclinique)		
	Zircone ex-Zy4	Zircone pure
a Å	5,1477 ± 0,0025	5,1507
b Å	5,2085 ± 0,0025	5,2028
c Å	5,3131 ± 0,0025	5,3156
β °	99,17 ± 0,02	99,194

Tableau 5 : Paramètres de maille de la zircone obtenue à partir de l'oxydation à haute température du Zy-4 comparés à ceux de la zircone pure (KISI et al., 1998).

Au cours de l'oxydation à haute température, l'étain, initialement en solution dans le métal, est « rejeté » en formant un liséré au milieu de l'épaisseur de la couche de zircone. Après la trempe, on se retrouve face à une couche de zircone de structure apparente colonnaire, dont la concentration en étain est significativement plus élevée au niveau du liséré (Figure 32).

⁶ En conditions nominales de fonctionnement du réacteur, des contraintes de compression se développent dans la zircone proche de l'interface métal/oxyde, et peuvent ainsi stabiliser la zircone tétragonale, ce qui ne semble pas être le cas ici, la zircone étant détachée de son substrat métallique.

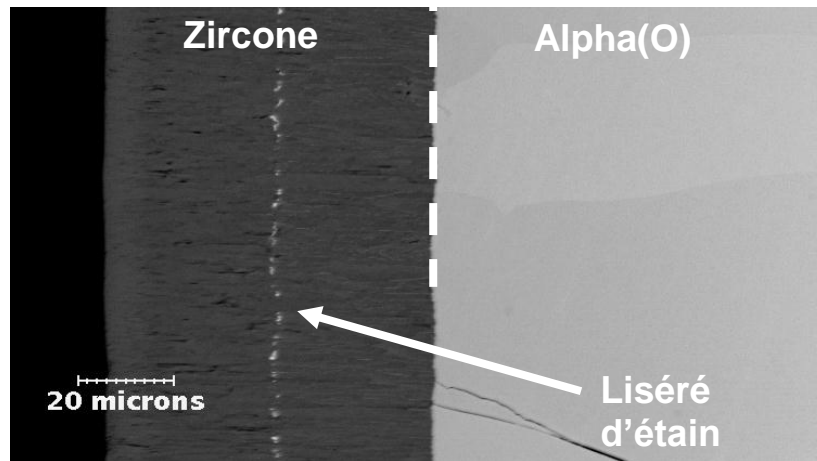


Figure 32 : Image MEB en électrons rétrodiffusés d'une coupe transversale des couches externes d'une gaine en Zy-4 oxydée 520s à 1200°C, soit un ECR de 10%.

Des fractographies post essai de compression d'anneaux (Figure 33) nous ont permis de mieux apprécier la microstructure colonnaire de cette couche, et de confirmer sa fragilité à température ambiante.

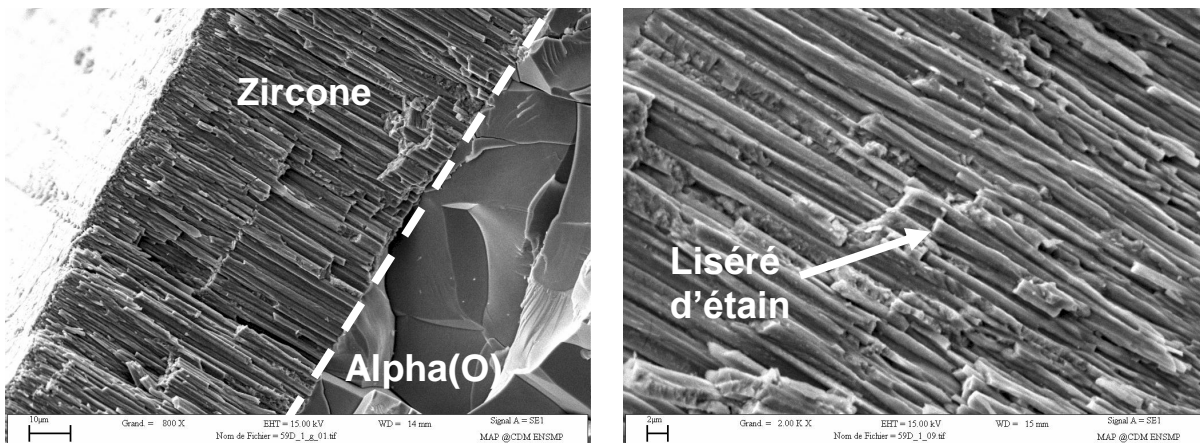


Figure 33 : Fractographies des faciès de rupture de la couche de zircone post-essai de compression d'anneaux sur une gaine oxydée 520s à 1200°C (ECR de 10%) et trempée.

La Figure 34 présente l'aspect extérieur de la gaine après oxydation : nous retrouvons sur la zircone l'état de surface de la gaine avant l'oxydation (le polissage de finition de la fabrication de la gaine notamment). Nous constatons également que, pour des niveaux d'oxydation allant jusqu'à 10% ECR, il n'y a pas de fissuration visible de l'extérieur, suite à la trempe, de la couche de zircone.

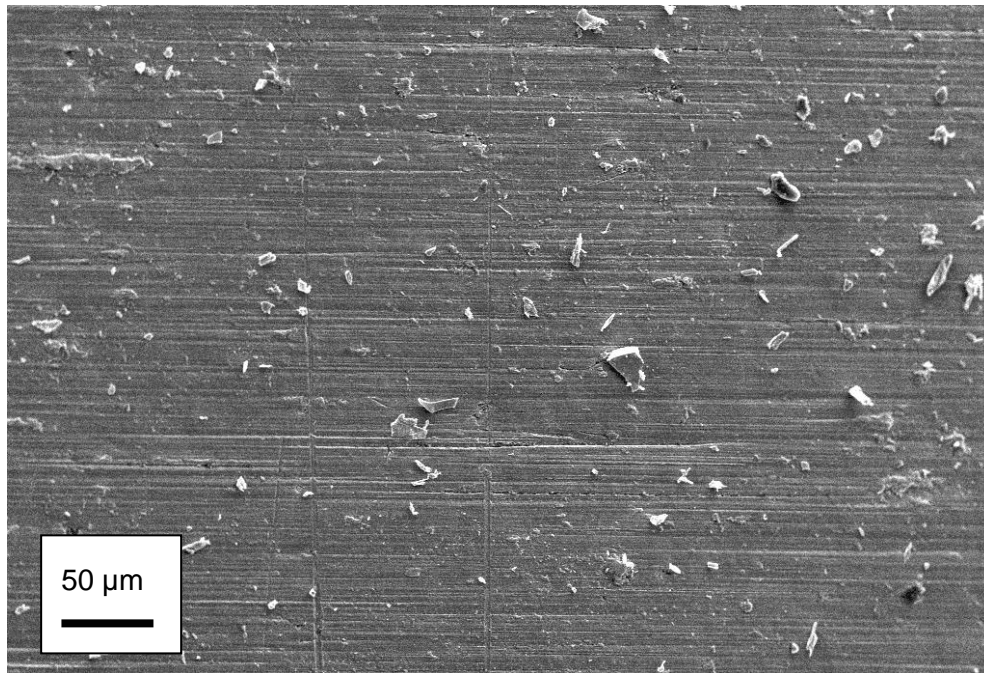


Figure 34 : Micrographie (MEB) de l'état de surface d'une gaine en Zy-4 oxydée 1349s à 1100°C (10% ECR) et trempée.

En ce qui concerne le comportement mécanique, la couche de zircone peut être considérée homogène malgré le liseré d'étain pour les taux d'oxydation étudiés dans le cadre de ce travail (ECR allant jusqu'à 17%). Le comportement de cette couche peut être caractérisé comme étant élastique-fragile. RYSHKEWITCH (1960) et YEUGO et al. (2006) ont proposé deux modèles d'évolution du module d'Young de la zircone pure avec la température (Figure 35). SIEFKEN et al. (2001) ont repris le modèle de RYSHKEWITCH pour constituer une base de données des propriétés des matériaux pour l'analyse des accidents des réacteurs à eau légère. On peut toutefois observer un écart important des modules entre les deux auteurs, avec un facteur 2 à haute température. Ceci illustre le manque de données mécaniques précises sur cette phase.

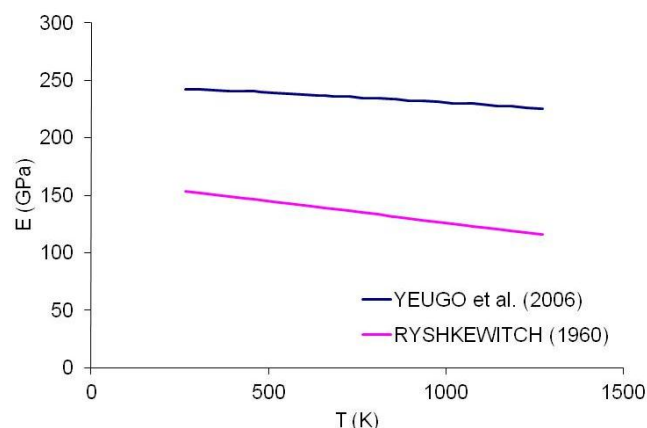


Figure 35 : Evolution du module d'Young de la zircone pure en phase monoclinique avec la température selon YEUGO et al. (2006) et RYSHKEWITCH (1960).

Le coefficient de Poisson a été fixé par SIEFKEN et al. (2001) à une valeur de 0,3 pour la phase monoclinique de la zircone. En ce qui concerne la contrainte à rupture, aucune donnée n'est disponible, à notre connaissance, pour la zircone pure ni pour la zircone obtenue par l'oxydation du Zy-4. Nous retiendrons à titre indicatif que la résistance de la zircone stabilisée par l'oxyde d'Yttrium (ZrO_2 / Y_2O_3) est de l'ordre de 2GPa en compression, et d'environ 500 MPa en traction.

2.4.3. Etat de contraintes de la gaine stratifiée après trempe

Nous avons vu que la gaine oxydée à haute température (entre 1100 et 1200°C, jusqu'à un ECR de 17%) puis trempée à l'eau à température ambiante est formée de trois couches : une première couche extérieure de zircone (ZrO_2) très riche en oxygène et fragile, une deuxième couche de phase α stabilisée par l'oxygène à haute température ($\alpha(O)$) elle aussi fragile, et une troisième couche interne de phase ex- β , qui peut garder une certaine ductilité. Nous avons vu qu'en dessous d'une teneur locale en oxygène de 0,4% mass., la couche ex- β est bien la seule à pouvoir garder une ductilité significative après oxydation et trempe, à température ambiante. Nous avons également constaté la fissuration de la couche intermédiaire d' $\alpha(O)$ suite à la trempe, alors que la couche de zircone semble rester intègre.

On peut supposer que la trempe de la gaine oxydée, et déjà stratifiée à haute température, entraîne l'apparition de contraintes liées aux différences entre les coefficients de dilatation thermique des trois couches⁷. Afin de vérifier ces hypothèses, nous avons voulu évaluer expérimentalement le profil de contraintes dans la gaine oxydée et trempée. Nous avons choisi d'utiliser la technique de la diffraction de neutrons, disponible au CEA (LLB/ORPHEE), pour y parvenir. Dans le cadre d'une collaboration, nous avons utilisé le diffractomètre G5.2 du laboratoire LLB, avec la participation dans l'expérience de V. KLOSEK, J.L. BECHADE et A. CABRERA SALCEDO. Le diffractomètre utilisé a pour particularité d'atteindre un volume de jauge (volume analysé par les neutrons) minimal de $0,5 * 0,5 * 0,5 \text{ mm}^3$. Or, ces dimensions sont trop grandes face à l'épaisseur des couches des gaines étudiées dans le cadre de ce travail et à l'épaisseur de la gaine en général (Tableau 2). Faute de temps, et dans l'optique d'une première approche, nous avons restreint notre expérience à l'estimation de la contrainte moyenne dans la couche $\alpha(O)$, pour un seul plan de diffraction. Compte tenu de ces limitations, nous avons choisi de travailler sur un échantillon sous forme de plaquette (et non de tube), qui a été oxydé de façon à obtenir la couche d' $\alpha(O)$ la plus épaisse possible, en évitant les écaillages de la couche de zircone qui peuvent survenir à la trempe ou au cours de l'oxydation. L'échantillon finalement utilisé est une plaquette de dimensions 45mm* 14mm* 6mm en Zy-4 recristallisé obtenue à partir d'une tôle laminée à froid (la caractérisation de ce matériau a été réalisée par BECHADE, 1995). La plaquette a été oxydée 3520s à 1250°C, puis trempée à l'air à température ambiante. L'épaisseur obtenue de la couche $\alpha(O)$ est de 300 μm . Sur cet échantillon, très oxydé, un écaillage de la zircone s'opère pendant la découpe. Nous avons alors utilisé des micrographies obtenues sur un autre échantillon, moins oxydé mais tout à fait représentatif de celui analysé aux neutrons, pour construire un schéma qui illustre la microstructure de notre plaquette. Ce schéma est présenté en Figure 36.

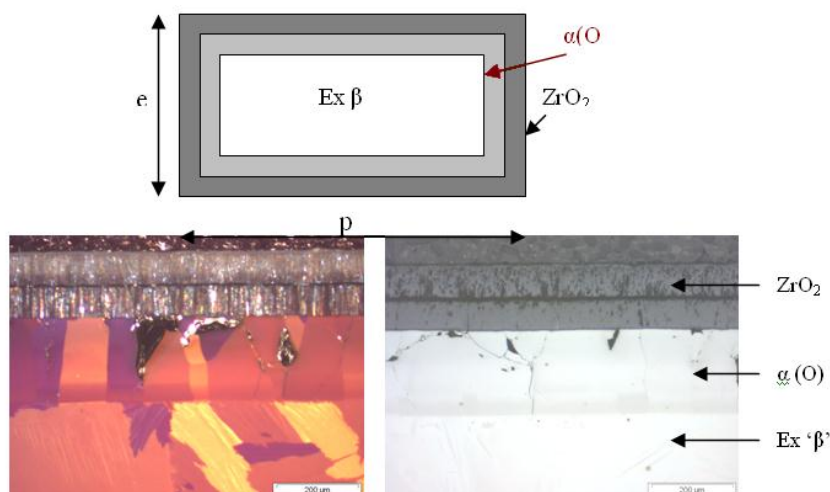


Figure 36 : Schéma de l'échantillon analysé par diffraction des neutrons.

⁷ D'autant plus que pour des cas plus oxydés que ceux étudiés dans le cadre de ce travail, on a une rupture spontanée à la trempe.

L'utilisation de la diffraction des neutrons pour déterminer les contraintes résiduelles de la couche $\alpha(O)$ implique de travailler à des profondeurs significatives à partir de la surface de l'échantillon. Un travail préalable visant à positionner les interfaces de la couche $\alpha(O)$, non exposé ici, a donc été nécessaire. Ceci fait, une estimation de la contrainte moyenne sur cette couche a alors été possible. La Figure 37 présente un schéma des repères utilisés pour l'analyse en diffraction de neutrons sur la plaquette étudiée.

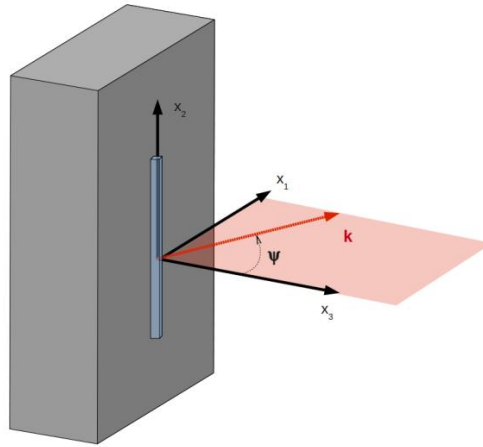


Figure 37 : Schéma des repères utilisés pour l'analyse en diffraction de neutrons. Le volume de jauge est illustré en bleu.

Nous avons observé sur cet échantillon, et en toute rigueur uniquement pour les grains ayant un plan (10.1) perpendiculaire à la direction X_1 , que nous sommes bien en traction dans le plan de l'échantillon sur la couche $\alpha(O)$. En supposant qu'elle est isotrope, nous avons estimé la déformation ϵ_{11} à 0,0009. Dans la mesure où les grains de la couche $\alpha(O)$ ont une taille équivalente à l'épaisseur de la couche (300 μm dans ce cas), nous avons considéré pour le calcul de la contrainte un monocristal en état de contrainte plane, avec $\epsilon_{22} = \epsilon_{11}$ et $\sigma_{33} = 0$, où le module d'Young est de 71 GPa et le coefficient de Poisson de 0,37 (valeurs obtenues sur le plan (10.1) d'un monocristal sans prendre en compte la forte teneur en oxygène dans la couche $\alpha(O)$). La déformation estimée correspondrait à une contrainte résiduelle σ_{11} de l'ordre de 100 MPa (Annexe 2).

Un calcul dont le but est d'estimer le profil des contraintes le long de l'épaisseur de la gaine suite à la trempe a été mis au point. Il s'agit d'une part d'un calcul analytique, et d'autre part d'une simulation par éléments finis, qui suppose un matériau stratifié avant et après refroidissement, avec un comportement supposé isotrope purement élastique, où les contraintes calculées sont dues aux différences de dilatation thermique dans une plage définie de températures. Ce calcul a été développé pour des géométries plaque et tube, le calcul développé pour la géométrie plaque étant une bonne approximation du calcul pour la géométrie gaine (Annexe 5).

Dans la mesure où une relaxation de contraintes peut s'opérer à haute température, en début de refroidissement, nous avons considéré deux hypothèses concernant la prise en compte ou non de cette relaxation. Nous avons utilisé la définition de la plage de températures pour introduire les deux hypothèses : dans le cas où on ne prend pas en compte une accommodation des contraintes, on suppose que la dilatation thermique s'opère tout au long du refroidissement, si bien que la plage de températures du calcul correspond à la plage de températures du refroidissement ; par contre, lorsqu'on introduit une hypothèse supposant une accommodation de contraintes à haute température, on suppose que, au cours du refroidissement, les contraintes dues à la dilatation thermique sont accommodées dans un premier temps, et jusqu'à une température « initiale effective », à partir de laquelle on calcule les contraintes. Pour cette deuxième hypothèse, la plage de températures du calcul est alors définie à partir de la température « initiale effective », et jusqu'à la température ambiante. La température « initiale effective », qui fait référence à la température au refroidissement à laquelle les accommodations ne sont plus permises, a été fixée à 800°C pour notre calcul. A cette température, la transformation de phase β - α du zirconium est

presque finie (même à des fortes teneurs en oxygène), et la transformation tétragonale-monoclinique de la zirconie, qui entraîne des fortes dilatations volumiques, est supposée terminée.

Nous avons utilisé la version analytique pour calculer le profil des contraintes thermiques pour la plaque dont les contraintes ont été évaluées par diffraction de neutrons. Deux profils différents ont été obtenus, suivant les deux hypothèses de relaxation des contraintes à haute température. Compte tenu de l'hypothèse d'isotropie, le profil de contrainte est le même suivant les directions x et y du plan de la plaque, et proche de zéro le long de l'épaisseur de la plaque (direction z). Le profil de la contrainte selon x et y est présenté en Figure 38.

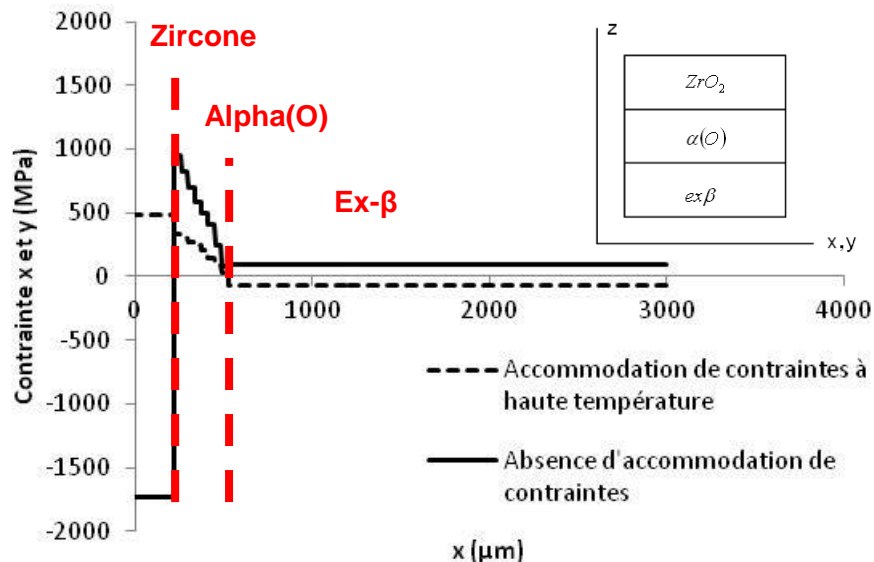


Figure 38 : Profils de contraintes thermiques selon x et y obtenues par calcul analytique (avec les deux hypothèses) pour le cas d'une plaquette oxydée en double face 3520s à 1250°C et trempée à l'air à température ambiante. Seule la moitié du profil est représentée.

Deux points sont à noter concernant les résultats de ce calcul de contraintes liées à la trempe :

- Les contraintes calculées dans la phase $\alpha(\text{O})$ sont (au moins localement) supérieures à la contrainte à rupture de l'ordre de 200MPa évaluée par STERN (2007), et cela, quelle que soit l'hypothèse faite sur l'accommodation des contraintes à haute température.
- La contrainte moyenne évaluée par le calcul est supérieure à la contrainte moyenne évaluée expérimentalement dans la couche $\alpha(\text{O})$, et cela, quelle que soit l'hypothèse faite sur l'accommodation des contraintes à haute température.

Suite à ces résultats, il serait légitime d'affirmer que la fissuration que nous avons observée en microscopie optique précédemment dans la couche $\alpha(\text{O})$, suggère une couche $\alpha(\text{O})$ en état de traction endommagée. Par contre, l'absence d'endommagement de la couche de zirconie suggère que la zirconie se trouve en compression suite à la trempe (ou que les contraintes de traction sont faibles). D'ailleurs, on pourrait supposer que la fissuration de la couche $\alpha(\text{O})$ en traction contribue à la relaxation de contraintes de la zirconie en compression.

Nous retiendrons ces conclusions afin d'établir les hypothèses de calcul qui nous permettront par la suite de simuler au mieux l'essai de compression d'anneaux sur gaine oxydée à haute température et trempée.

2.5. Conclusion : Etat de la gaine oxydée et trempée en conditions APRP

Dans le cadre de ce travail, des tronçons de gaine en Zy-4 ont été oxydés en conditions APRP (simple face), et trempés à l'eau à température ambiante. Des gaines stratifiées comportant une couche externe de zircone, une couche intermédiaire de phase $\alpha(O)$ et une couche interne de phase ex- β ont été obtenues.

Afin de caractériser le comportement des gaines oxydées, une synthèse bibliographique sur leur comportement a été réalisée. Elle a été complétée par la réalisation d'examens métallographiques et d'expériences qui nous ont permis de constater que la gaine est constituée de trois couches avec des propriétés mécaniques particulières.

Nous retiendrons notamment que :

- La couche de zircone formée à haute température par l'oxydation du Zy-4 présente un comportement fragile dont les propriétés restent aujourd'hui mal connues. Néanmoins, malgré sa structure colonnaire et un rejet d'étain perceptible en microscopie, son comportement mécanique élastique serait celui d'une couche homogène.
- La couche d' $\alpha(O)$, fragile, présente un gradient d'oxygène le long de l'épaisseur de la couche, qui est à l'origine d'un gradient de certaines propriétés mécaniques, dont le module d'Young. Cette couche présente une forte texturation due au phénomène d'oxydation plutôt qu'à la sélection des variants. Elle est endommagée suite à la l'oxydation et la trempe, si bien qu'elle présente de nombreuses fissures radiales.
- La couche ex- β peut avoir un comportement ductile ou fragile, selon sa teneur en oxygène. En dessous de 0,5% mass. O environ (à température ambiante), elle a un comportement élastique-plastique avec écrouissage. Cette couche présente une forte texturation due à la sélection des variants, mais son comportement élastique reste isotrope.
- L'état de contraintes de la gaine suite à la trempe n'est pas nul. La couche $\alpha(O)$ serait en traction, et la couche de zircone se trouverait en compression suite à la trempe. La fissuration de la couche $\alpha(O)$ en traction contribuerait à la relaxation de contraintes de la zircone en compression, raison pour laquelle cette couche reste adhérente.

Chapitre 3 : Analyse fine des essais de compression d'anneaux

Dans le chapitre précédent nous avons caractérisé les gaines oxydées et trempées en conditions APRP. L'objectif de ce chapitre est d'exposer l'analyse des expériences qui nous permettront d'aboutir à la compréhension du scénario de rupture de ces gaines, testées par essai de compression d'anneaux. Nous nous intéressons particulièrement au rôle que joue chacune des couches formant la gaine stratifiée dans la réponse mécanique car l'interprétation de l'essai et la déduction des propriétés qui peuvent en être déduites en dépendent.

Chapitre 3 : Analyse fine des essais de compression d'anneaux	51
3.1. L'essai de compression d'anneaux	53
3.2. Caractérisation du comportement mécanique post-oxydation et trempe des gaines par essai de compression d'anneaux	53
3.2.1. Zy-4 oxydé à 1100°C pendant 467s (ECR=6%)	54
3.2.2. Zy-4 oxydé à 1100°C pendant 1349s (ECR=10%)	58
3.2.3. Zy-4 oxydé à 1200°C pendant 520s (ECR=10%)	60
3.2.4. Zy-4 oxydé à 1200°C pendant 1492s (ECR=17%)	61
3.2.5. Endommagement de la zircone au point d'appui avec les plateaux en début d'essai	63
3.2.6. Fractographies post-essai de compression d'anneaux sur gaine oxydée HT et trempée	65
3.2.7. Bilan des essais de compression d'anneaux	69
3.3. Essais de compression d'anneaux sur gaine sablée	70
3.4. Conclusion : Bilan expérimental de l'endommagement de la gaine sollicitée par essai de compression d'anneaux.....	73

3.1. L'essai de compression d'anneaux

Les essais de compression d'anneaux, plus connus sous leur nom en anglais « Ring Compression Tests (RCT) », sont largement utilisés pour caractériser le comportement mécanique des gaines en alliage de Zr, et plus particulièrement dans le cadre de l'APRP. En fait, ceux-ci sont peu consommateurs de matière et ne nécessitent pas d'usinage complexe, ce qui est un avantage notamment quand il s'agit de matériaux irradiés et/ou très fragiles. L'essai consiste à écraser un tronçon de gaine (l'anneau) entre deux plateaux à vitesse de déplacement constante, en traçant la courbe de force-déplacement. Pour ce type d'essai, on considère que la rupture de l'éprouvette a lieu s'il y a au moins une fissure localement traversante. Des propriétés mécaniques, telles que la force maximale atteinte ou le déplacement à rupture, peuvent être déduites d'un essai de compression d'anneaux à partir de la courbe de force déplacement, mais leur estimation dépend directement du choix de la chute de charge qui correspond à la rupture de l'éprouvette.

L'utilisation du RCT pour évaluer la tenue mécanique post-oxydation et trempe des gaines en alliage de zirconium oxydées à haute température s'avère assez délicate. Le matériau stratifié ainsi testé est à l'origine de courbes de force déplacement complexes avec de nombreuses chutes de charge. Dans la littérature, les analyses des mécanismes de rupture des anneaux en compression qui justifient le choix du point de dépouillement des courbes de force- déplacement sont peu nombreuses. Certains auteurs estiment que l'éprouvette de compression est rompue lorsque la charge chute d'au moins 30% (BILLONE et al., 2008). YEGOROVA et al. (2005) ont montré par des essais de compression interrompus sur des échantillons de gaines oxydés en double face à haute température et trempés, que les chutes de charge de faible amplitude sont associées à la fissuration locale des couches fragiles externes et internes de zircone et $\alpha(O)$, et que les chutes de charges significatives sont associées à la formation de fissures traversantes.

Le travail ici présenté cherche à avancer des arguments permettant de justifier le choix du point de dépouillement des essais post-oxydation et trempe des gaines en Zy-4. L'objectif de cette partie est de déterminer les conditions d'apparition d'une fissure traversante et de positionner cet événement sur la courbe de force-déplacement. Nous nous intéressons particulièrement au rôle que joue chacune des couches dans le comportement mécanique de la gaine stratifiée car l'interprétation de l'essai et la déduction des propriétés résultantes, en dépendent.

3.2. Caractérisation du comportement mécanique post-oxydation et trempe des gaines par essai de compression d'anneaux

Au SRMA/CEA, les essais de compression d'anneaux sont menés sur une machine de traction universelle, à l'aide d'un dispositif d'écrasement inversé. Pour des raisons de sécurité, il a été choisi d'intégrer un berceau au plateau bas du dispositif. Ce berceau permet de centrer l'éprouvette et de la maintenir en place pour éviter qu'elle ne glisse en début d'essai. Un schéma de la géométrie du support est présenté en Figure 39.

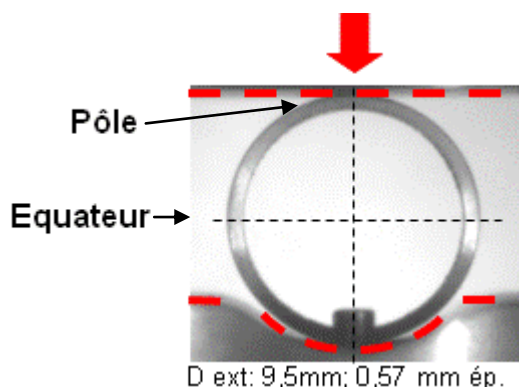


Figure 39 : Schéma de la géométrie du dispositif pour essai de compression d'anneaux utilisé au SRMA/CEA. Le diamètre de la gaine est de 9,5mm.

Dans le cadre de ce travail, des tronçons de 10mm de long ont été prélevés dans les éprouvettes préparées selon les différentes conditions d'oxydation correspondant à nos 4 cas d'étude (§ 2.4.1). Des écaillages partiels de la zircone ont été observés à la découpe sur les échantillons les plus oxydés (oxydés 1492s à 1200°C, soit un ECR de 17%).

Les anneaux obtenus ont été utilisés pour réaliser des essais de compression d'anneaux à une vitesse de déplacement de la traverse de 0,5mm/min, et un déplacement maximal de 6mm. Afin de faciliter leur analyse, les essais ont été filmés. Ce choix a aussi restreint un paramètre d'étude : la température d'essai. Nous avons dû limiter ce travail à l'étude des essais à température ambiante, pour pouvoir les filmer.

Dans un premier temps, la reproductibilité des courbes de force déplacement a été vérifiée pour nos quatre cas d'étude, sur au moins 3 éprouvettes par cas. Nous avons ensuite vérifié que les courbes obtenues sont en accord avec la base de données du CEA. La reproductibilité des courbes est présentée en Figure 40.

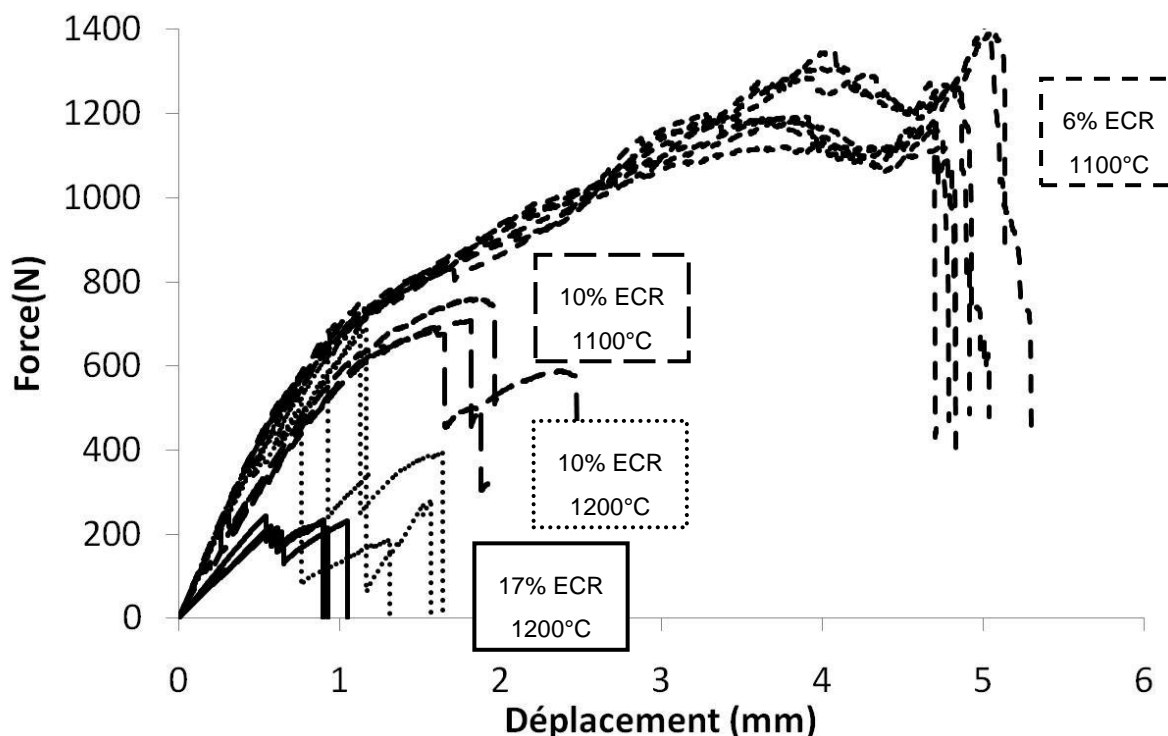


Figure 40 : Reproductibilité des courbes de force- déplacement obtenues par essai de compression d'anneaux sur gaine oxydée selon différentes conditions, puis trempée, pour nos quatre cas d'étude.

Pour chacun des quatre cas étudiés, des RCT interrompus ont été menés à différents stades de fissuration. Les éprouvettes ont été examinées par la suite à la loupe binoculaire pour analyser l'avancée des fissures, ce qui a pour avantage de mettre en évidence la propagation macroscopique des fissures dans la couche ex- β . Dans la mesure où nous avons confirmé que les courbes sont reproductibles nous n'utiliserons qu'une courbe type par cas étudié pour analyser l'avancée des fissures. La totalité des courbes se trouve en Annexe 6.

3.2.1. Zy-4 oxydé à 1100°C pendant 467s (ECR=6%)

L'étude de l'exemple d'un essai sur anneau en Zy-4 oxydé à 1100°C pendant 467s (ECR=6%) est présentée sur la Figure 41. Sur cette figure, la courbe force-déplacement est corrélée aux images obtenues lors de l'enregistrement de l'essai.

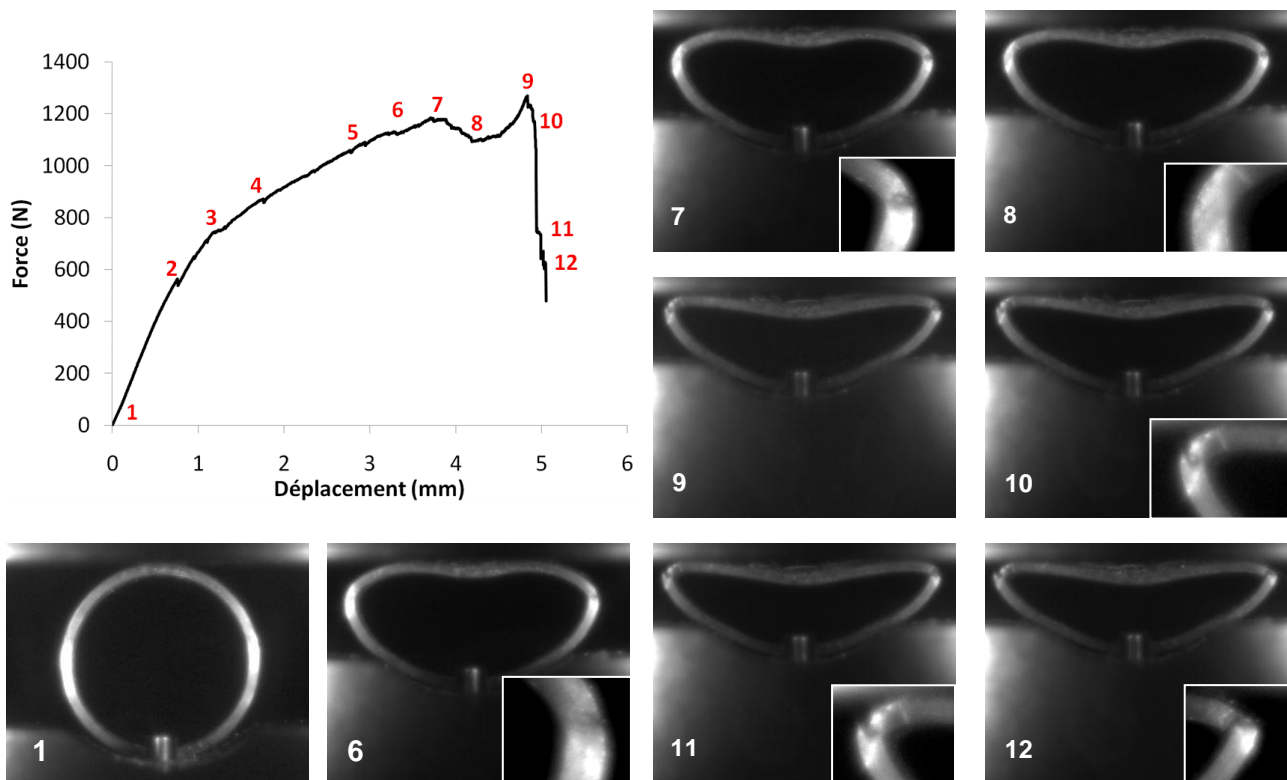


Figure 41 : Courbe force-déplacement pour un essai de compression sur un anneau en Zy-4 oxydé en simple face à 1100°C pendant 467s (ECR=6%) avec les images obtenues lors de l'enregistrement de l'essai.

La corrélation entre les images filmées et la courbe de force déplacement nous a permis d'observer que l'écaillage de la zircone a eu lieu d'abord au pôle supérieur de l'anneau (pas 2 et 3 sur la Figure 41) puis au pôle inférieur (pas 4 et 5), au niveau du contact avec les supports. Ensuite, l'amorçage et la propagation des fissures ont été observés aux équateurs. Des fissures localement traversantes ont été observées aux pas 7 et 10 (pour chaque équateur), et une première fissure traversante sur toute la longueur de l'anneau a été identifiée au pas 11.

La même analyse a été menée sur les autres courbes de force déplacement obtenues par RCT sur anneau en Zy-4 oxydé à 1100°C pendant 467s (ECR=6%). Quatre essais arrêtés à différents stades ont également été réalisés. Les images obtenues par des examens réalisés à la loupe binoculaire après essai sont présentées en Figure 42.

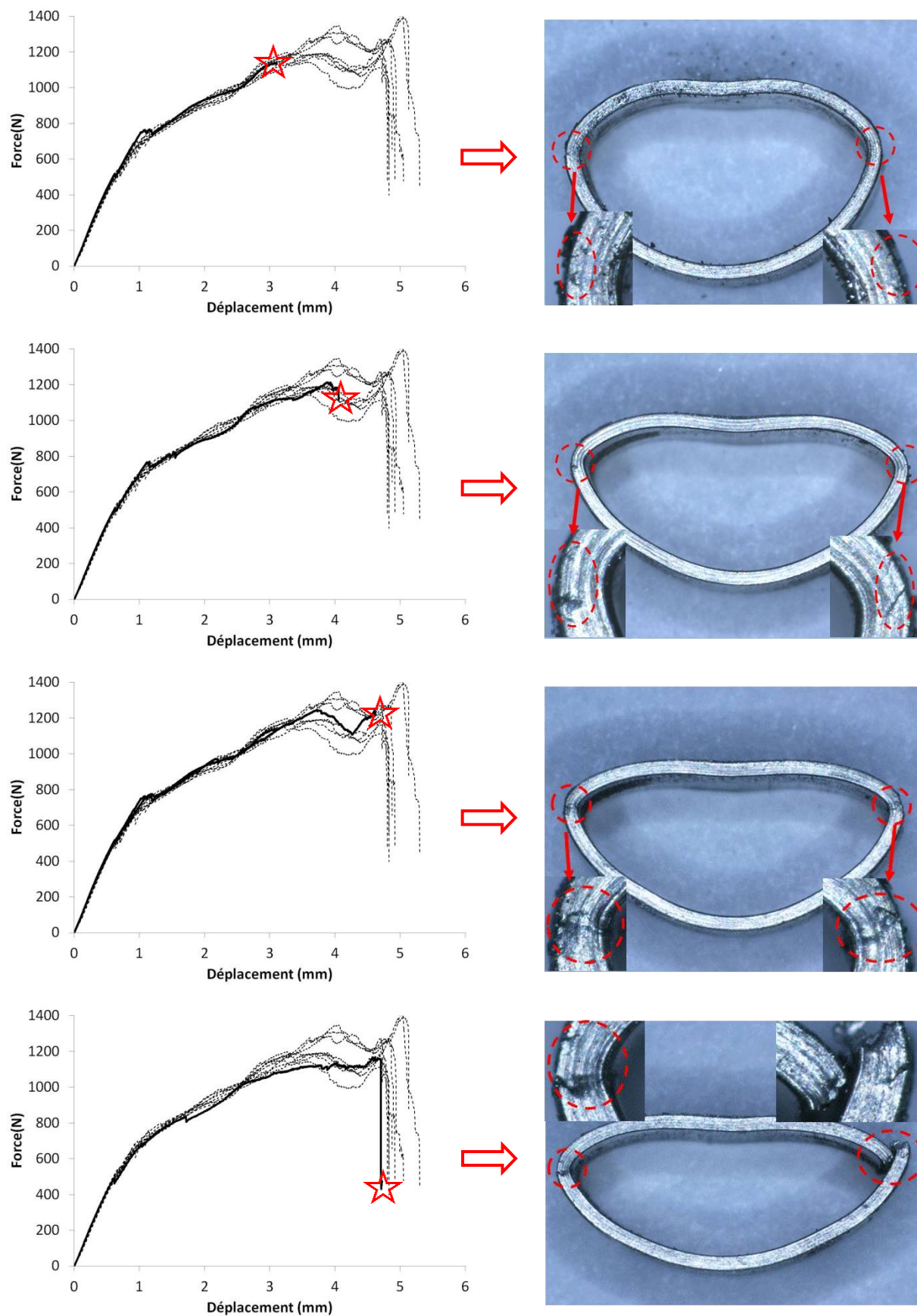


Figure 42 : Images obtenues à la loupe binoculaire après essais de compression d'anneaux interrompus à différents stades pour des anneaux en Zy-4 oxydés simple face à 1100°C pendant 467s (ECR=6%).

Les résultats nous ont permis de confirmer que les gaines en Zy-4 oxydées à 1100°C pendant 467s (ECR=6%) gardent une certaine ductilité après la trempe. Les petites chutes de force suite auxquelles la pente de la courbe est légèrement modifiée (au début de l'essai) correspondent à des écaillages de la zircone au niveau des appuis. Pendant l'essai, une propagation stable des fissures macroscopiques est observée aux équateurs. Le début de cette propagation est observé lorsque la pente de la courbe devient nulle. La fissure se propage ensuite sur toute la longueur de l'anneau jusqu'à une rupture totale de la gaine. L'accès à la zone centrale de l'échantillon restant difficile au cours de l'essai, la façon dont cette propagation s'opère n'a pas été analysée de façon détaillée.

Nous avons aussi vu qu'en général, les courbes correspondant à ce cas montrent une bonne reproductibilité. Néanmoins, une dispersion relativement importante a été observée sur les courbes à partir du moment où la propagation macroscopique des fissures est censée commencer (pas 6 sur la Figure 41 et la Figure 42).

Pour rappel, deux oxydations ont été réalisées pour ce cas d'étude. Ces oxydations nous ont permis d'obtenir des échantillons à un ECR réel de 6,3 et 6,5% respectivement. La Figure 43 présente les courbes de force déplacement des échantillons en Zy-4 oxydés à 1100°C pendant 467s (ECR visé=6%) selon l'ECR réel obtenu. On observe une dispersion de l'évolution de la force en fonction du déplacement à partir du moment où il y a une propagation de fissures. Cette dispersion de la force ne dépend pas directement du taux d'oxydation réel de l'échantillon, compte tenu du faible écart entre les deux ECR réels comparés ici.

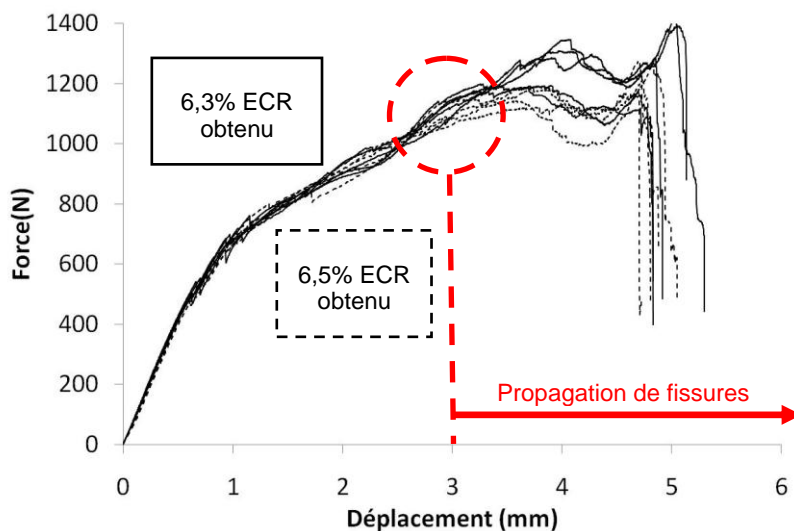


Figure 43 : Courbes de force déplacement des échantillons en Zy-4 oxydés à 1100°C pendant 467s (ECR visé=6%) selon l'ECR obtenu. ECR obtenu = 6,3% en lignes continues, et ECR obtenu = 6,5% en pointillées.

On peut donc conclure que la variation de 0,2% d'ECR n'entraîne pas de dispersion importante. La dispersion observée est sans doute liée à la mise en place des échantillons dans le berceau : l'écrasement d'un anneau légèrement décalé peut entraîner une déformation asymétrique de celui-ci, et avoir un effet sur la propagation des fissures le long de l'anneau et sur la réponse mécanique de l'éprouvette, qu'on retrouverait sur les courbes de force-déplacement.

3.2.2. Zy-4 oxydé à 1100°C pendant 1349s (ECR=10%)

L'étude de l'exemple d'un essai sur anneau en Zy-4 oxydé à 1100°C pendant 1349s (ECR=10%) est présentée sur la Figure 44. Sur cette figure, la courbe force-déplacement est corrélée aux images obtenues lors de l'enregistrement de l'essai.

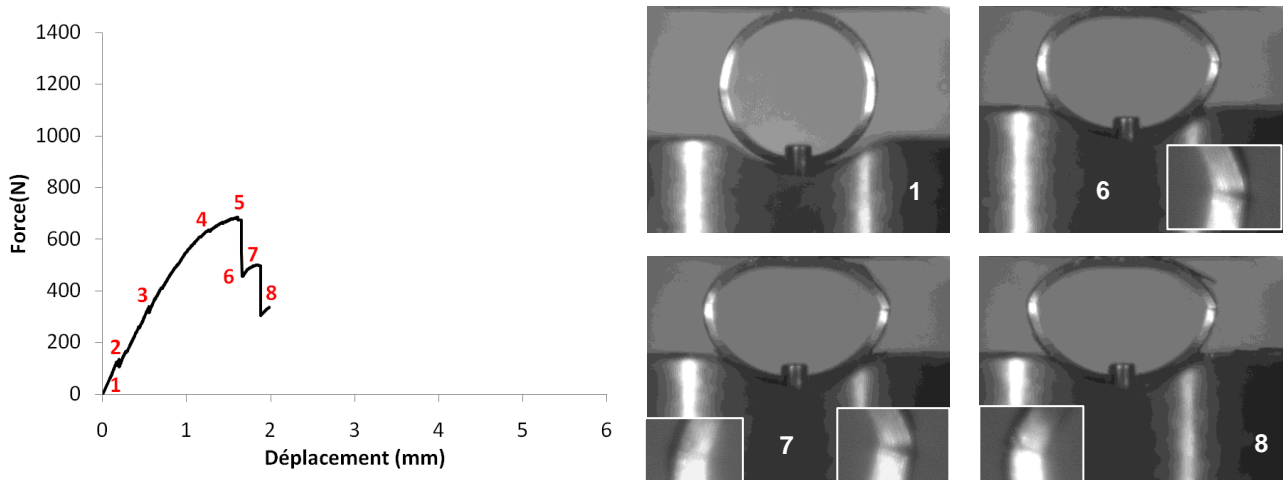


Figure 44 : Courbe force-déplacement pour un essai de compression sur un anneau en Zy-4 oxydé en simple face à 1100°C pendant 1349s (ECR=10%) avec les images obtenues lors de l'enregistrement de l'essai.

La corrélation entre les images filmées et la courbe de force déplacement nous a permis d'observer que l'écaillage de la zircone a eu lieu d'abord au pôle supérieur de l'anneau (pas 2 et 3 sur la Figure 44) puis au pôle inférieur (pas 4), au niveau du contact avec les supports. Ensuite, une fissure traversante a été observée pour un équateur au pas 6. Une propagation de fissure (pas 7) suivie d'une deuxième fissure traversante (pas 8) a été observée sur l'autre équateur.

La même analyse a été menée sur les autres courbes de force déplacement obtenues par RCT sur anneau en Zy-4 oxydé à 1100°C pendant 1349s (ECR=10%). Trois essais arrêtés à différents stades ont également été réalisés. Les images obtenues par des examens réalisés à la loupe binoculaire après essai sont présentées en Figure 45.

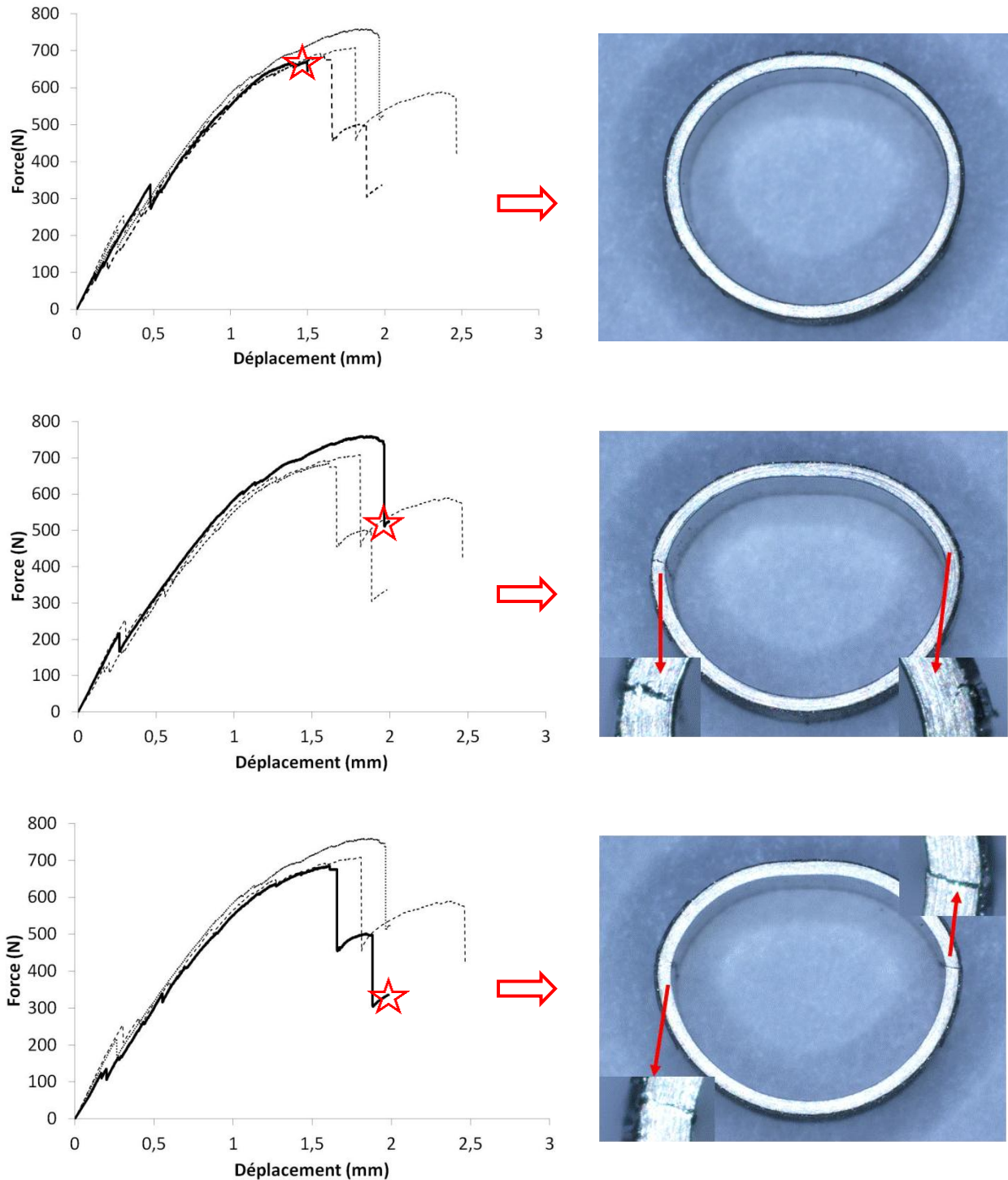


Figure 45 : Images obtenues à la loupe binoculaire après essais de compression d'anneaux interrompus à différents stades pour des anneaux en Zy-4 oxydés simple face à 1100°C pendant 1349s (ECR=10%).

Les résultats nous ont permis de confirmer que les gaines en Zy-4 oxydées à 1100°C pendant 1349s (ECR=10%) se déforment de façon permanente avant de subir une première fissuration traversante sans propagation à un équateur. Les petites chutes de force suite auxquelles la pente de la courbe est légèrement modifiée (au début de l'essai) correspondent à des écaillages de la zircone au niveau des appuis. Suite à la première chute, qui correspond déjà à une rupture, une propagation stable d'une fissure s'opère sur l'autre équateur. La propagation de la deuxième fissure devenant instable, une deuxième chute de force en découle, la deuxième fissure devenant traversante.

3.2.3. Zy-4 oxydé à 1200°C pendant 520s (ECR=10%)

L'étude de l'exemple d'un essai sur anneau en Zy-4 oxydé à 1200°C pendant 520s (ECR=10%) est présentée sur la Figure 46. Sur cette figure, la courbe force-déplacement est corrélée aux images obtenues lors de l'enregistrement de l'essai.

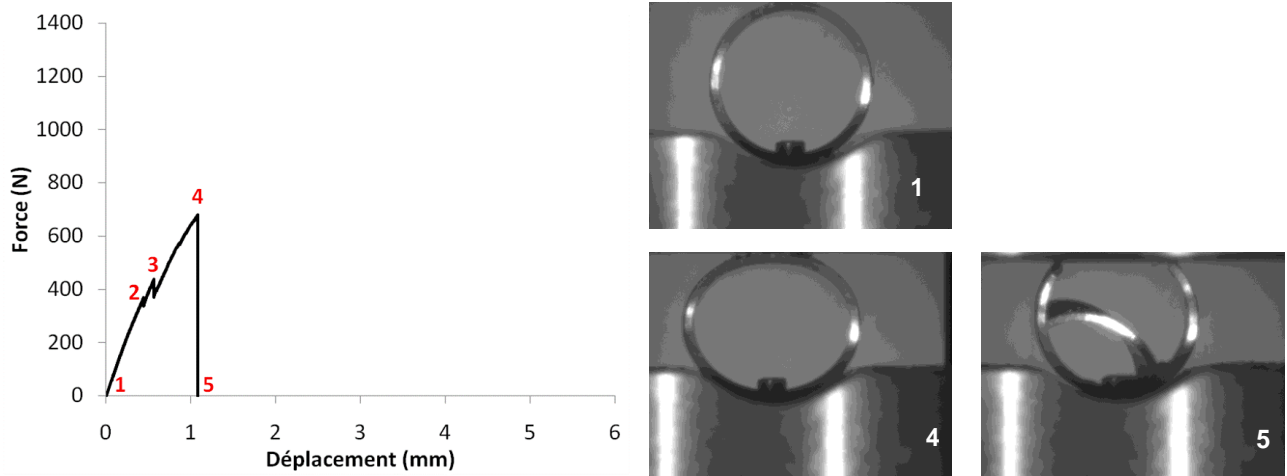


Figure 46 : Courbe force-déplacement pour un essai de compression sur un anneau en Zy-4 oxydé en simple face à 1200°C pendant 520s (ECR=10%) avec les images obtenues lors de l'enregistrement de l'essai.

Sur cet exemple en particulier, la corrélation entre les images filmées et la courbe de force déplacement nous a permis d'observer que l'écaillage de la zircone a eu lieu d'abord au pôle supérieur de l'anneau (pas 2 sur la Figure 46) puis au pôle inférieur (pas 3), au niveau du contact avec les supports. Ensuite, une rupture de l'éprouvette à $\pm 45^\circ$ à partir du pôle supérieur a été observée pour la chute significative de force (pas 5).

La même analyse a été menée sur les autres courbes de force déplacement obtenues par RCT sur anneau en Zy-4 oxydé à 1200°C pendant 520s (ECR=10%). Nous avons vu qu'en général, les courbes montrent une bonne reproductibilité. Néanmoins, une dispersion relativement importante a été observée sur la valeur de la charge à laquelle a lieu la première chute significative de charge sur les courbes correspondant à ces échantillons. Pour ces essais, les éprouvettes testées ont présenté des ruptures à des endroits différents dans le repère de l'anneau positionné lors du test. La Figure 47 illustre les différentes localisations des fissures traversantes observées suite à la première chute de force :

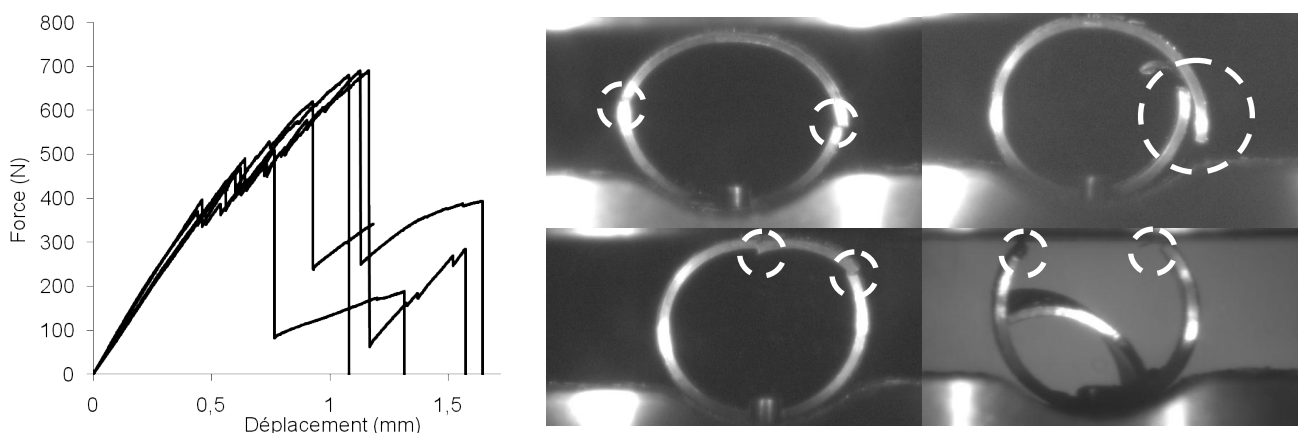


Figure 47 : Images obtenues lors de l'enregistrement des essais, des différentes localisations des fissurations observées sur les éprouvettes prélevées sur l'échantillon en Zy-4 oxydé à 1200°C pendant 520s (ECR=10%), suite à la première chute de charge.

Dans les conditions d'oxydation subies par cet échantillon en particulier, nous avons observé que la teneur moyenne en oxygène de la couche ex- β se trouve aux alentours de 0,4% mass. (Figure 16). Or, cette teneur en oxygène correspond à la limite de transition ductile/fragile du comportement mécanique à température ambiante (BRACHET et al., 2008). De cette façon, on pourrait expliquer la dispersion de la charge à rupture observée (Figure 47) par le fait que l'échantillon peut être fragilisé localement par l'oxydation.

Deux essais arrêtés à différents stades ont également été réalisés. Les images obtenues par des examens réalisés à la loupe binoculaire après essai sont présentées en Figure 48.

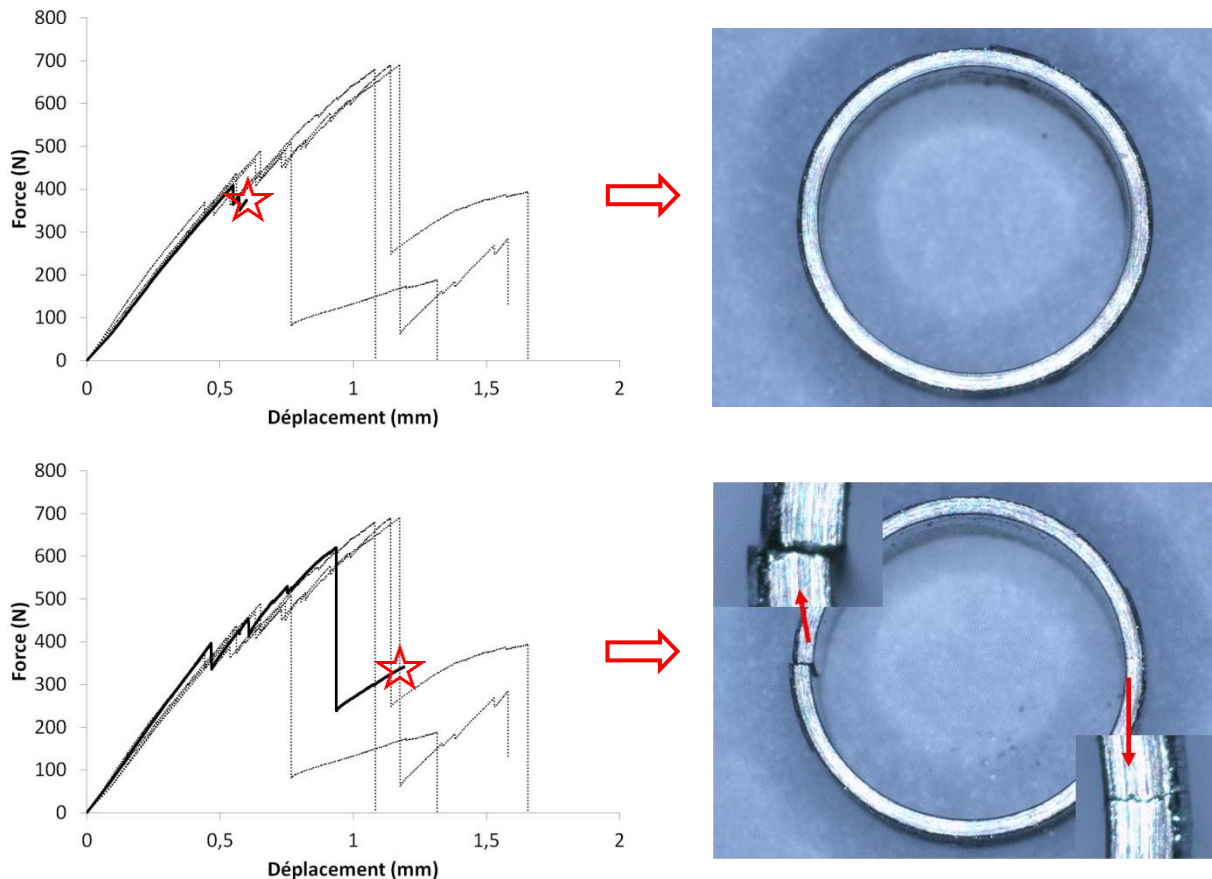


Figure 48 : Images obtenues à la loupe binoculaire après essais de compression d'anneaux interrompus à différents stades pour des anneaux en Zy-4 oxydés simple face à 1200°C pendant 520s (ECR=10%).

Les résultats nous ont permis de confirmer que les gaines en Zy-4 oxydées à 1200°C pendant 520s (ECR=10%) ne présentent aucune ductilité résiduelle. Les petites chutes de force suite auxquelles la pente de la courbe est légèrement modifiée (au début de l'essai) correspondent à des écaillages de la zircone au niveau des appuis. Ces échantillons subissent une fissuration traversante sans propagation stable à un ou deux endroits différents de la gaine car celle-ci est fragilisée localement. Cette fissuration est corrélée à la première chute significative de force.

3.2.4. Zy-4 oxydé à 1200°C pendant 1492s (ECR=17%)

L'étude de l'exemple d'un essai sur anneau en Zy-4 oxydé à 1200°C pendant 1492s (ECR=17%) est présentée sur la Figure 49. Sur cette figure, la courbe force-déplacement est corrélée aux images obtenues lors de l'enregistrement de l'essai.

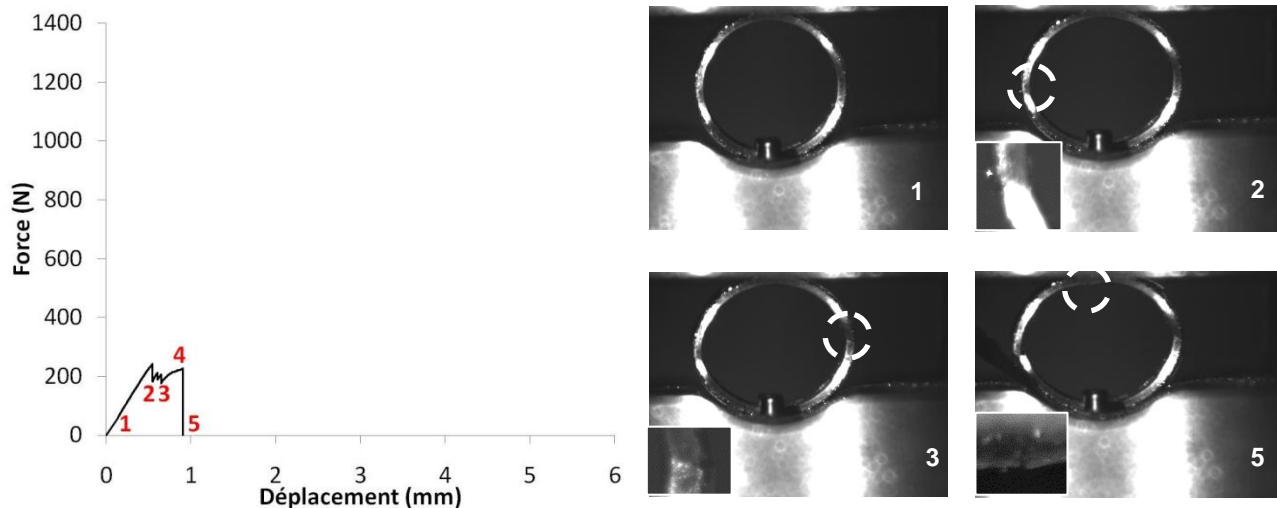


Figure 49 : Courbe force-déplacement pour un essai de compression sur un anneau en Zy-4 oxydé en simple face à 1200°C pendant 1492s (ECR=17%) avec les images obtenues lors de l'enregistrement de l'essai.

Sur cet exemple en particulier, la corrélation entre les images filmées et la courbe de force déplacement nous a permis d'observer qu'une fissure traversante apparaît à un équateur avant tout écaillage de la zircone (pas 2 sur la Figure 57) puis à l'autre équateur (pas 3). Un écaillage partiel de la zircone est observé au niveau du contact avec le support supérieur entre ces deux pas. Ensuite, une troisième fissure traversante apparaît au pôle supérieur lors de la troisième chute de force (pas 5).

La même analyse a été menée sur les autres courbes de force déplacement obtenues par RCT sur anneau en Zy-4 oxydé à 1200°C pendant 1492s (ECR=17%). Deux essais arrêtés à différents stades ont également été réalisés. Les images obtenues par des examens réalisés à la loupe binoculaire après essai sont présentées en Figure 50.

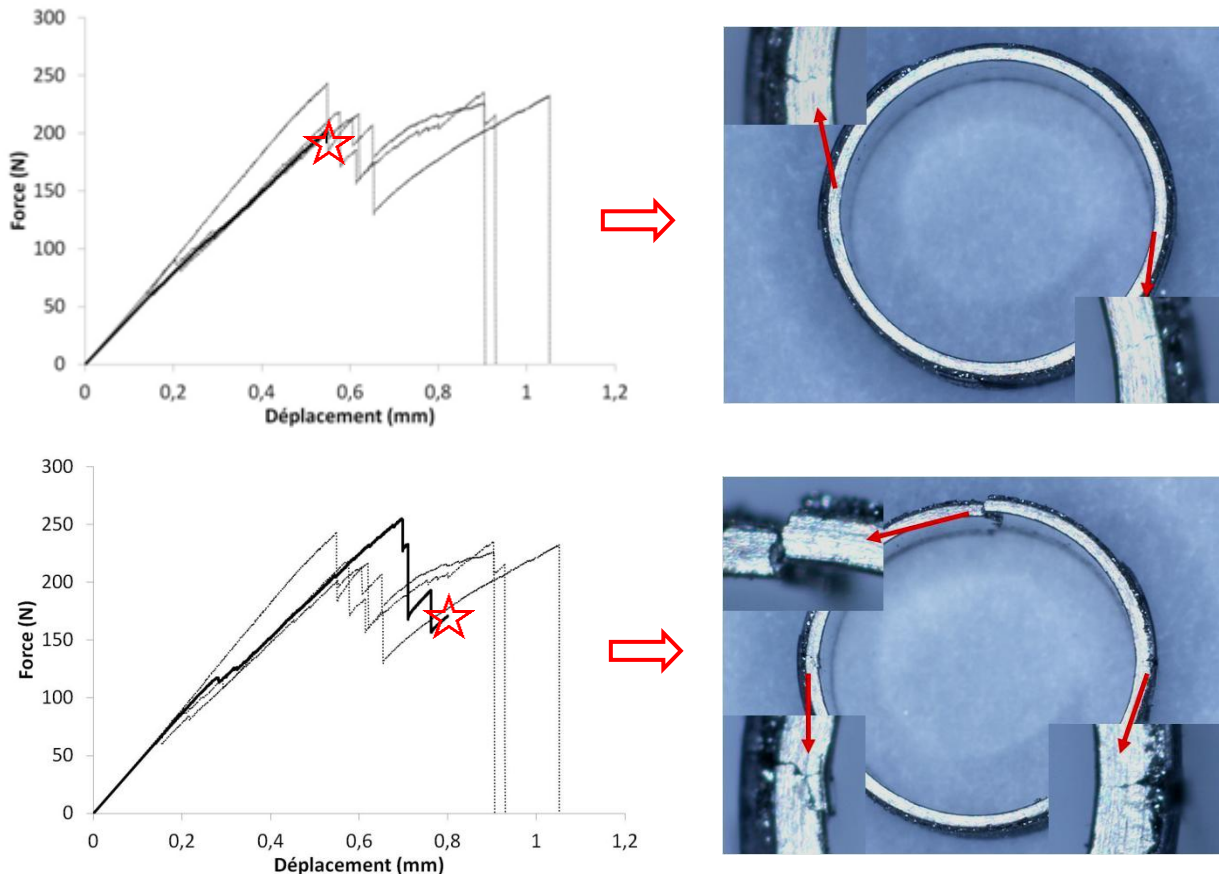


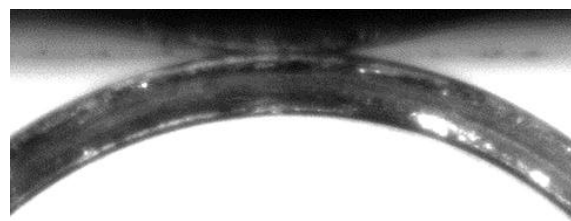
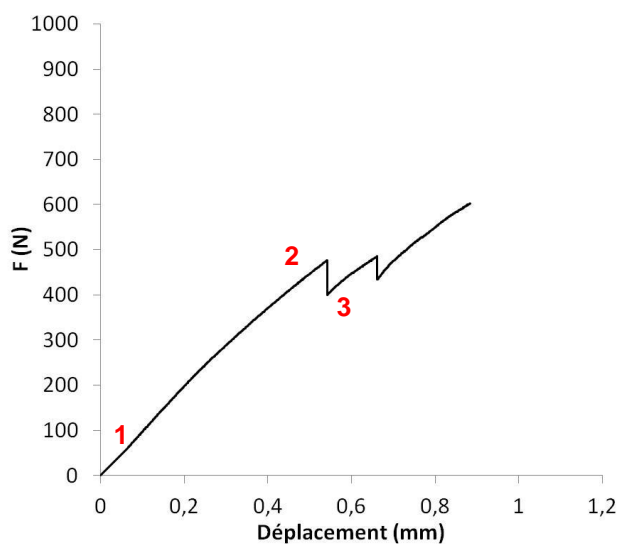
Figure 50 : Images obtenues à la loupe binoculaire après essais de compression d'anneaux interrompus à différents stades pour des anneaux en Zy-4 oxydés simple face à 1200°C pendant 1492s (ECR=17%).

Les résultats nous ont permis de confirmer que les gaines en Zy-4 oxydées à 1200°C pendant 1492s (ECR=17%) sont fragiles au point de présenter une fissure traversante dès la première chute de force, à des charges faibles (de l'ordre de 200N), parfois avant même que l'écaillage de la zircone au niveau des supports ne s'opère. Néanmoins, nous rappelons que des écaillages partiels de la zircone ont été observés à la découpe des éprouvettes utilisées pour analyser ce cas d'étude. Ceci nous amène à considérer que les éprouvettes sont fortement endommagées avant même le début des essais de compression d'anneaux.

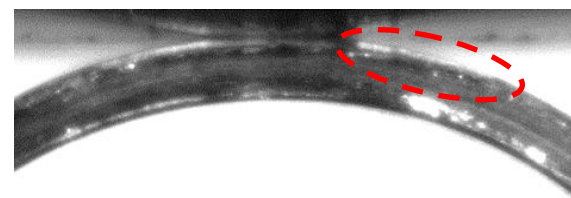
3.2.5. Endommagement de la zircone au point d'appui avec les plateaux en début d'essai

Malgré nos efforts pour filmer les RCT avec une résolution correcte, seules les vidéos de certains essais ont été enregistrées de telle façon qu'on observe clairement le contact du plateau supérieur avec l'anneau (le contact inférieur est caché par la pièce qui sert à maintenir l'anneau en place pendant l'essai, donc difficile à suivre au cours de l'essai). La Figure 51 présente un schéma qu'illustre la corrélation entre les courbes de force déplacement et les images filmées au niveau du contact supérieur :

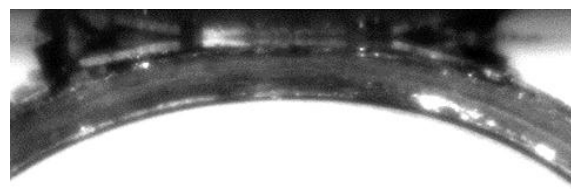
Exemple N° 1



1. Début de l'essai

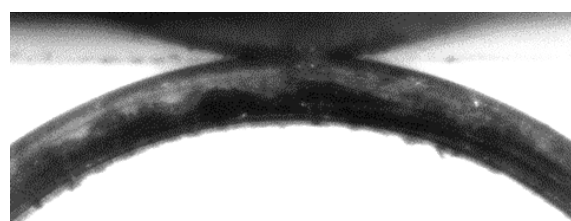
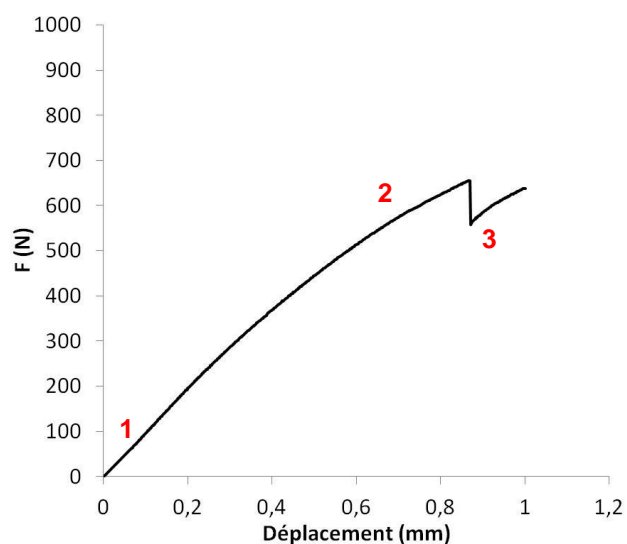


2. Ecaillage local de la zircone

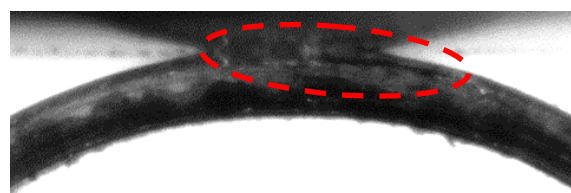


3. Rupture totale de la zircone au pôle supérieur

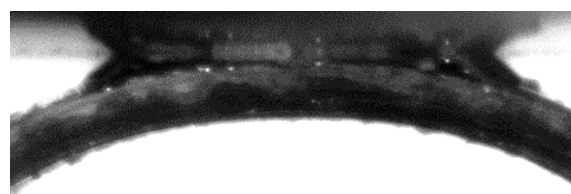
Exemple N° 2



1. Début de l'essai



2. Décollement local de la zircone



3. Rupture totale de la zircone au pôle supérieur

Figure 51 : Corrélation entre les courbes de force déplacement et les images filmées au niveau du contact supérieur pour des tronçons de gaine oxydés à 1200°C à un ECR de 10%, et testés par RCT.

La corrélation entre la courbe de force déplacement et les images filmées nous indique un endommagement de la couche de zircone (décollement local et/ou écaillage local) avant la première petite chute de force de la courbe. Dans nos exemples, la chute correspond au changement du point d'appui de la gaine avec le plateau, suite à l'écaillage total ou partiel de la zircone. L'écaillage de cette couche peut se dérouler en plusieurs étapes jusqu'à arriver à un écaillage total au niveau du contact (comme l'exemple de la Figure 44), ou en une seule fois, cas pour lequel il n'y a qu'une seule chute. **L'écaillage correspondant à ces chutes de force, est observé dans une zone comprise à environ +/- 30° du pôle supérieur.**

L'écaillage total de la zircone au pôle inférieur (avec changement de point d'appui de la gaine) a lieu après celui du pôle supérieur. La Figure 52 reprend le premier exemple de la Figure 51, pour illustrer la deuxième chute de force de la courbe, qui correspond à l'écaillage total de la zircone au pôle inférieur. **En général, l'amplitude de la zone d'écaillage est de +/- 45° du pôle inférieur.**

Exemple N° 1

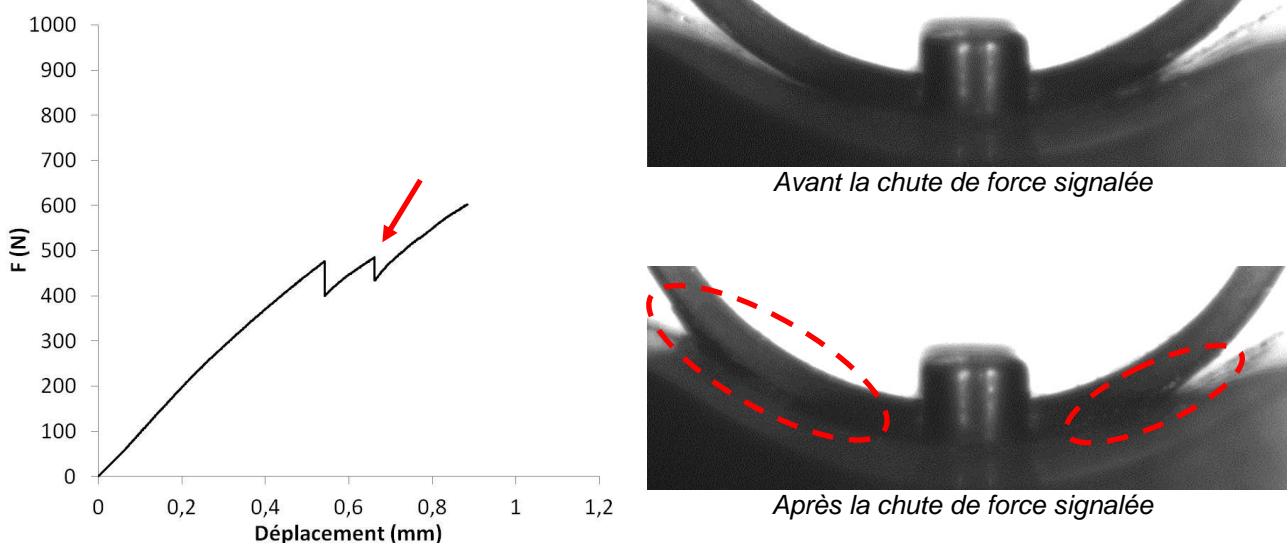


Figure 52 : Corrélation entre les courbes de force déplacement et les images filmées au niveau du contact inférieur pour des tronçons de gaine oxydés à 1200°C à un ECR de 10%, et testés par RCT.

On peut conclure que la couche de zircone est endommagée très tôt au cours de l'essai, voire même lors de la mise en place de l'échantillon, au contact avec les plateaux, et que les chutes de force observées dans la zone élastique de la courbe de force déplacement correspondent au changement de point d'appui de la gaine suite à l'écaillage total ou partiel de la zircone.

3.2.6. Fractographies post-essai de compression d'anneaux sur gaine oxydée HT et trempée

Afin d'observer les faciès de rupture au MEB, les échantillons issus des essais interrompus ont été cassés manuellement, puis ont subi l'application d'un dépôt d'or. La Figure 53 présente la structure type globale observée pour les quatre cas d'étude.

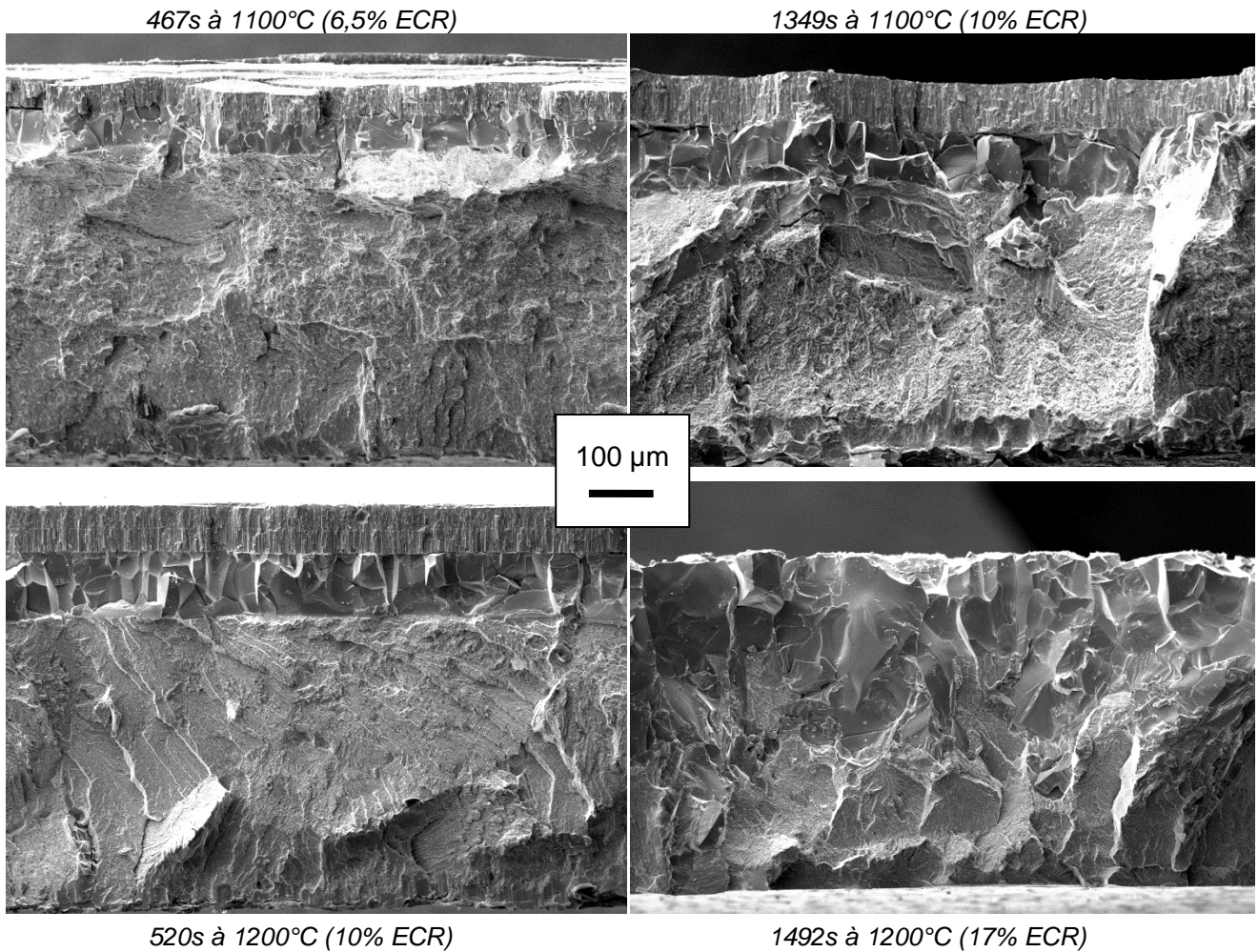


Figure 53 : Fractographies des 4 cas d'oxydation (Zy-4).

Nous avons constaté, en accord avec nos observations en microscopie optique et avec la littérature, la présence d'incursions de phase $\alpha(O)$ dans l'ex- β à partir d'un ECR de 10% pour les échantillons oxydés à 1100°C, et à partir de 17% d'ECR pour ceux oxydés à 1200°C. Ces incursions traversent la gaine pour le cas le plus oxydé (1492s à 1200°C- 17% ECR). Dans l'image qui illustre ce cas en Figure 53, la couche de zircone s'est écaillée lors de la rupture de l'anneau testé par RCT, si bien qu'elle est absente. En ce qui concerne le cas d'une oxydation de 1349s à 1100°C (10% ECR), la zone biphasée se montre plus large dans les fractographies post RCT que d'après les observations sur une coupe polie (Figure 54). Ceci serait dû au fait que la rupture suit le chemin le plus fragile, révélant ainsi la dimension réelle des incursions de phase $\alpha(O)$ dans la couche ex- β , par les fractographies post-RCT.

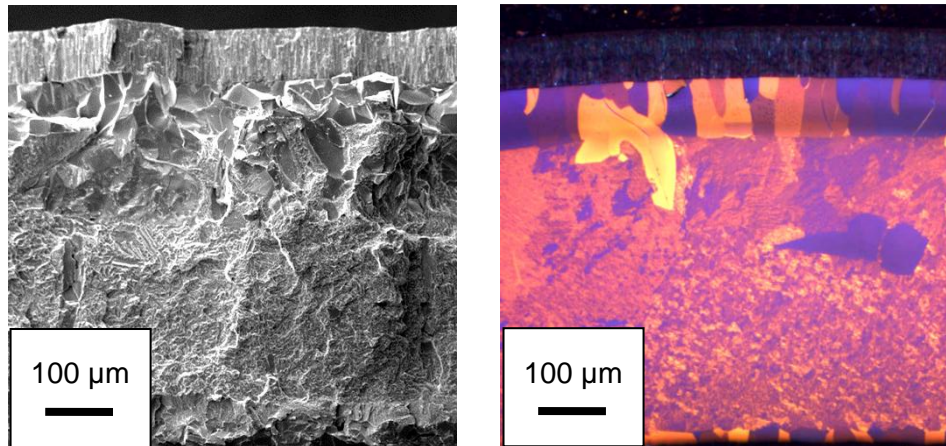
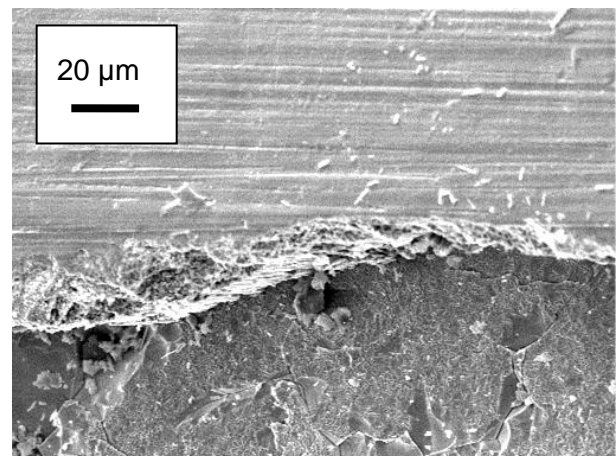
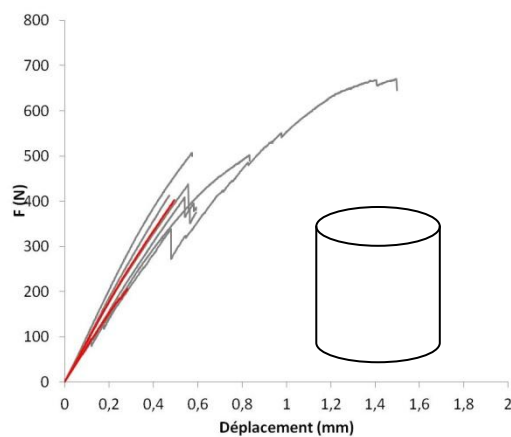
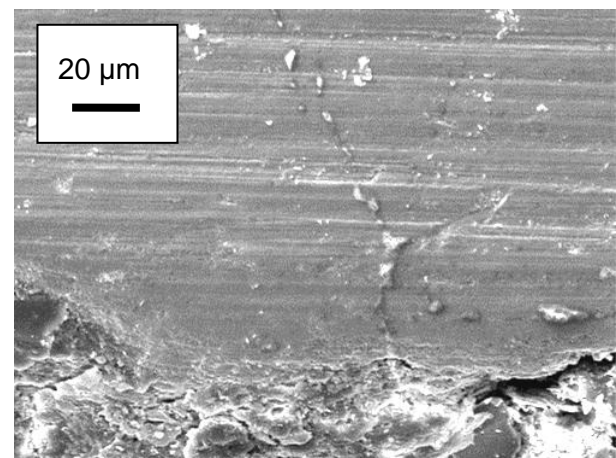
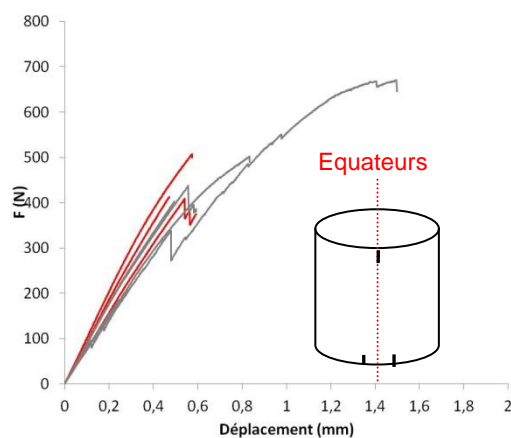


Figure 54 : Fractographie post-RCT (à gauche) et micrographie sur coupe polie en lumière polarisée (à droite) sur gaine en Zy-4 oxydée 1349s à 1100°C (10% ECR).

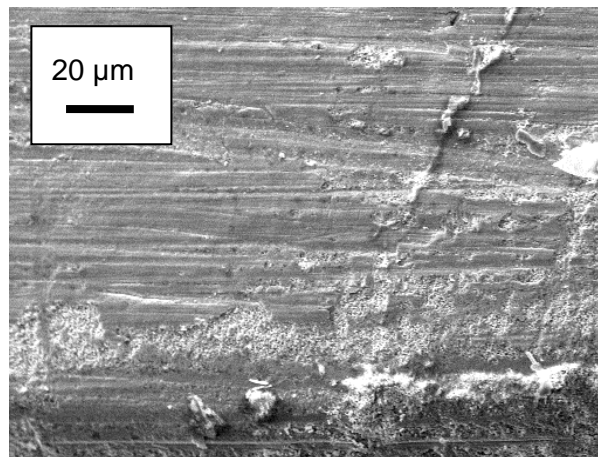
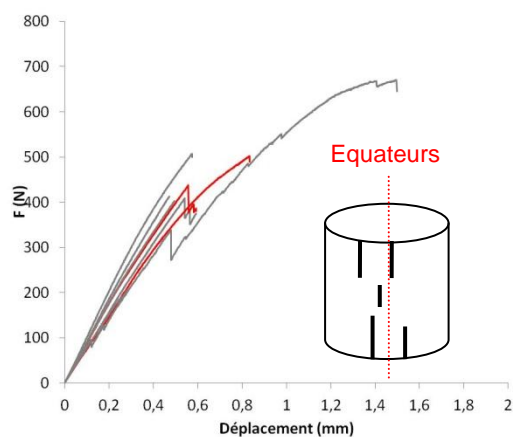
Afin d'étudier l'évolution de la fissuration de la couche de zircone au cours du RCT, la surface équatoriale externe des gaines oxydées ayant subi des RCT interrompus à différents stades a également été examinée. Un schéma qui résume les courbes de force-déplacement des essais interrompus analysés, et l'état de la zircone dans cette zone pour chaque cas, est présenté en Figure 55 :



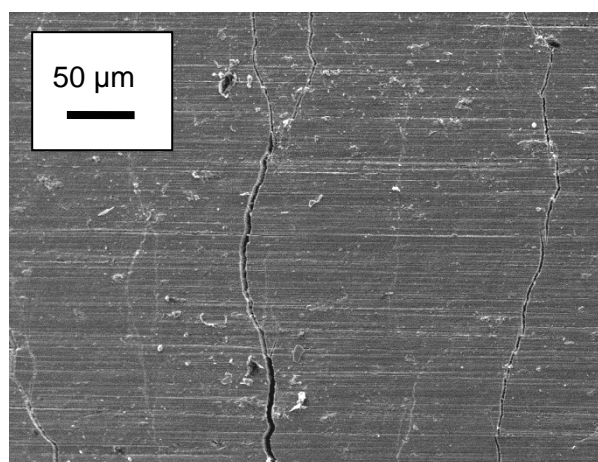
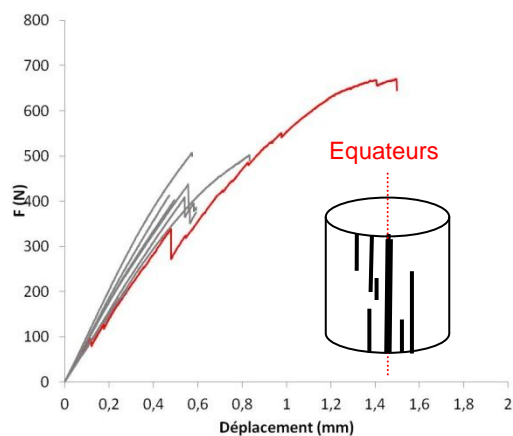
La couche $\alpha(O)$ est fissurée et la couche de zircone est intègre.



Quelques fissures presque imperceptibles (fermées, d'une longueur de l'ordre de 1mm) apparaissent aux bords, sur la zircone.



Les fissures sont plus nombreuses et plus longues (2mm), et apparaissent également au milieu de l'éprouvette.



Des réseaux de fissures plus denses sont observés autour d'une fissure équatoriale ouverte à l'extérieur de la zircone

Figure 55 : Courbes de force-déplacement des essais interrompus sur gaine oxydée.

En général, l'amorçage de la fissuration de la zircone n'est observé aux bords de l'anneau qu'à partir du moment où l'écaillage aux pôles a lieu. Ces fissures, initialement petites (~1mm) et peu nombreuses, se multiplient, et apparaissent également au milieu de l'éprouvette en fin de la zone élastique des courbes de force déplacement. En début de la zone plastique, des réseaux de fissures plus denses autour d'une fissure équatoriale ouverte à l'extérieur de la zircone ont été observés. Il s'agit d'une fissure ouverte le long de l'épaisseur des couches de zircone et d' $\alpha(O)$, non repérée sur la couche ex- β aux observations MEB ni sur l'image obtenue à la loupe binoculaire de la section transversale de l'anneau, ce qui indique que cette fissure reste non propagée dans la couche ex- β à ce stade du RCT.

La Figure 56 illustre l'endommagement observé aux pôles, dans la couche d' $\alpha(O)$ suite à l'écaillage de la zircone, ainsi que la fissure équatoriale ouverte, pour une gaine oxydée 1349s à 1100°C (ECR=10%) après RCT interrompu à un déplacement de la traverse de 1,6 mm. La courbe de force déplacement a été présentée en Figure 55.

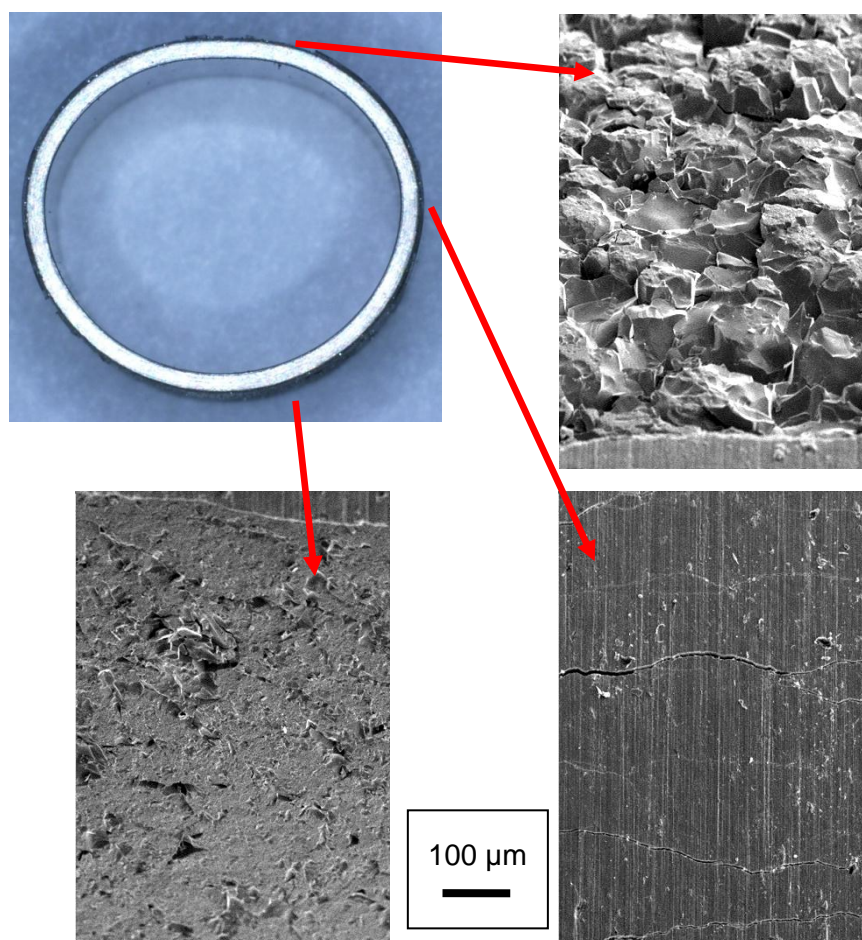


Figure 56 : Image obtenue à la loupe binoculaire d'une gaine oxydée 1349s à 1100°C (ECR=10%) après RCT interrompu à un déplacement de la traverse de 1,6 mm, et images obtenues au MEB de sa zone dense de fissuration, et aux pôles suite à l'écaillage de la zircone, à 5mm du bord de l'échantillon.

3.2.7. Bilan des essais de compression d'anneaux

La Figure 57 résume le bilan de la corrélation des observations avec les courbes force-déplacement des RCT :

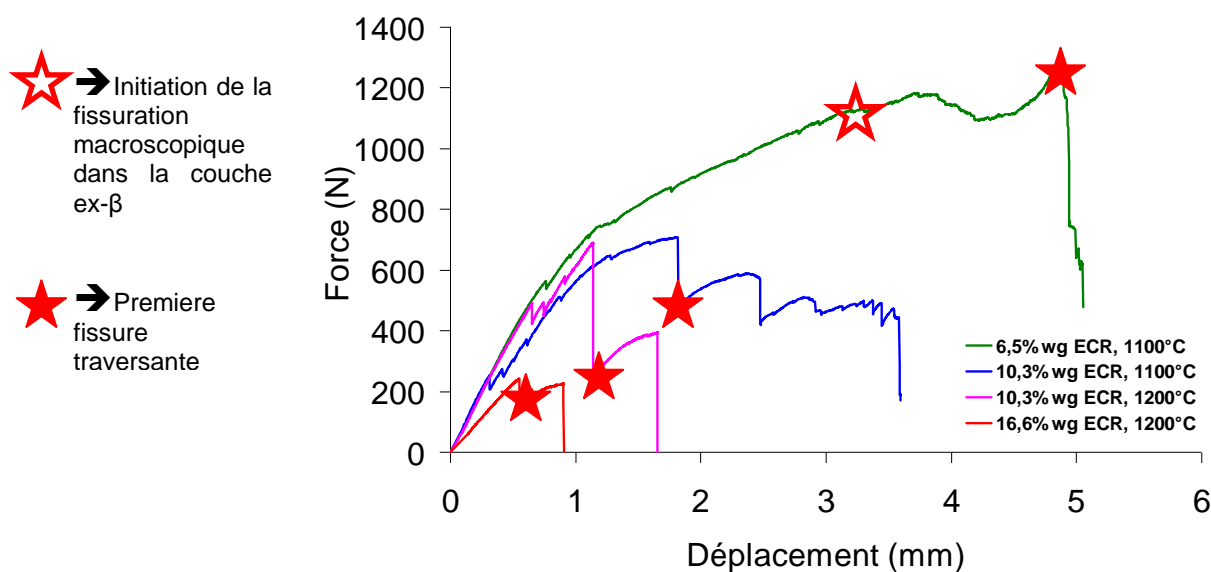


Figure 57 : Bilan des observations des essais de compression d'anneaux.

Nous retiendrons d'une façon générale que :

- La couche de zircone est endommagée très tôt au cours de l'essai, voire même lors de la mise en place de l'échantillon, au contact avec les plateaux.
- Les petites chutes de force en début d'essai, qui ont pour effet de changer légèrement la pente de la courbe de force-déplacement, correspondent au changement de point d'appui de la gaine suite à l'écaillage total ou partiel de la zircone, qui a lieu d'abord au pôle supérieur, puis au pôle inférieur.
- En début de la zone plastique de la courbe de force déplacement, la zircone située à l'équateur se fissure progressivement, jusqu'à former des réseaux de fissures plus denses autour d'une fissure équatoriale ouverte.
- L'amorçage et la propagation stable de la fissuration dans la couche α -ZrO₂ n'ont été constatés que pour des éprouvettes peu oxydées (ductiles, ECR=6%).
- La première chute significative de force sur la courbe de force déplacement correspond à la présence d'au moins une fissure traversante, pour les cas à 10 et 17% d'ECR.

Ces résultats ont été publiés en 2010 (CABRERA et al., 2010).

3.3. Essais de compression d'anneaux sur gaine sablée

Nous avons utilisé la diffraction de neutrons pour évaluer expérimentalement l'état de contraintes dans la couche α (O) suite à la trempe (§2.4.3). La comparaison de la valeur ainsi estimée avec celle obtenue par un calcul thermo élastique des contraintes nous a permis d'affirmer que la fissuration que nous avons observée dans la couche α (O), suite à un polissage mécanique manuel, suggère une couche α (O) en état de traction. L'absence d'endommagement de la couche de zircone suggère que la zircone se trouve, au contraire, en compression après la trempe. Nous avons donc supposé, dans un premier temps, que la fissuration de la couche α (O) contribue à la relaxation de contraintes de la zircone.

Toutes ces constatations semblent témoigner de l'endommagement de la couche α (O) suite à la trempe. De ce fait, on peut légitimement se demander à quel point les couches externes sont contributives ou non à la raideur de la gaine, au comportement mécanique global du matériau stratifié, et à l'amorçage et la propagation des fissures au cours de l'essai.

Nous avons donc entrepris de tester par RCT la seule couche α -ZrO₂ des gaines oxydées, afin de comparer la courbe de force déplacement obtenue avec la courbe obtenue par RCT sur la gaine intègre (stratifiée à 3 couches). Pour y parvenir, nous avons utilisé la technique de sablage pour enlever les couches fragiles externes des gaines oxydées et trempées. Un dispositif (dans une boîte à gants) avec une densité de grains de 80 particules/mm² a été utilisé.

Nous ne pouvons pas ignorer, dans le cadre de cette expérience, la présence des incursions de phase α (O) dans la couche α -ZrO₂ dans quelques uns des cas étudiés. Pour le cas à plus fort taux d'oxydation (1492s à 1200°C - ECR=17%) les incursions de phase α (O) dans la phase α -ZrO₂ sont traversantes (Figure 53). Pour ces échantillons, il est impossible d'enlever la couche α (O) en laissant le liséré continu de couche α -ZrO₂ dont on a besoin pour réaliser le RCT. Les échantillons oxydés 1349s à 1100°C (ECR=10%) ne sont pas tout à fait dans le même cas. Pour ces échantillons les incursions ne sont pas traversantes (elles définissent une zone biphasée estimée à 22µm d'épaisseur, pour une épaisseur de la couche α -ZrO₂ estimée à 420µm), si bien que nous avons considéré que leur présence dans le liséré d' α -ZrO₂ après sablage peut être tolérée. Nous avons alors limité l'expérience de RCT sur gaine sablée aux trois cas d'étude correspondant aux échantillons oxydés à des ECR de 6 et 10%. Tous les essais réalisés ont été filmés.

L'épaisseur des tronçons de gaine oxydés et trempés a été vérifiée par métrologie laser avant et après sablage, à 5 mm du bord de l'anneau. Une déviation de 10µm sur 6 mesures par échantillon

a été jugée acceptable. Nous avons ainsi estimé l'épaisseur résiduelle de la gaine pour vérifier que les couches fragiles ont été correctement enlevées. Malheureusement nous n'avons obtenu que deux échantillons sablés exploitables pour le cas à 6% ECR, deux pour le cas d'une oxydation de 1349s à 1100°C (10% ECR), et un pour celui de 520s à 1200°C (10% ECR). Le Tableau 6 résume les conditions de préparation des échantillons (a.), les épaisseurs des couches mesurées par microscopie optique (b.), et les données concernant l'efficacité du sablage réalisé (c.).

a. Conditions d'oxydation			b. Epaisseurs des couches estimées par microscopie optique			c. Sablage			
T (°C)	t (s)	ECR visé (%)	Zircone (µm)	Alpha(O) (µm)	Biphasé (µm)	Total à enlever zircone + α(O) (µm)	Epaisseur après sablage (µm)	Enlevé (mesure laser) (µm)	Ecart (µm)
1100	467	6	44	49	21	93	497	89	4
							506	80	13
1100	1349	10	75	83	42	158	466	127	31
							483	110	48
1200	520	10	68	82	20	150	456	142	8

Tableau 6 : Conditions de préparation des échantillons, épaisseurs des couches mesurées par microscopie optique et données concernant l'épaisseur enlevée par sablage.

L'analyse de la corrélation entre les images filmées et la courbe de force-déplacement de l'un des deux essais sur anneau en Zy-4 oxydé à 1100°C pendant 467s (ECR=6%) et sablé, est présentée sur la Figure 58 à titre d'exemple.

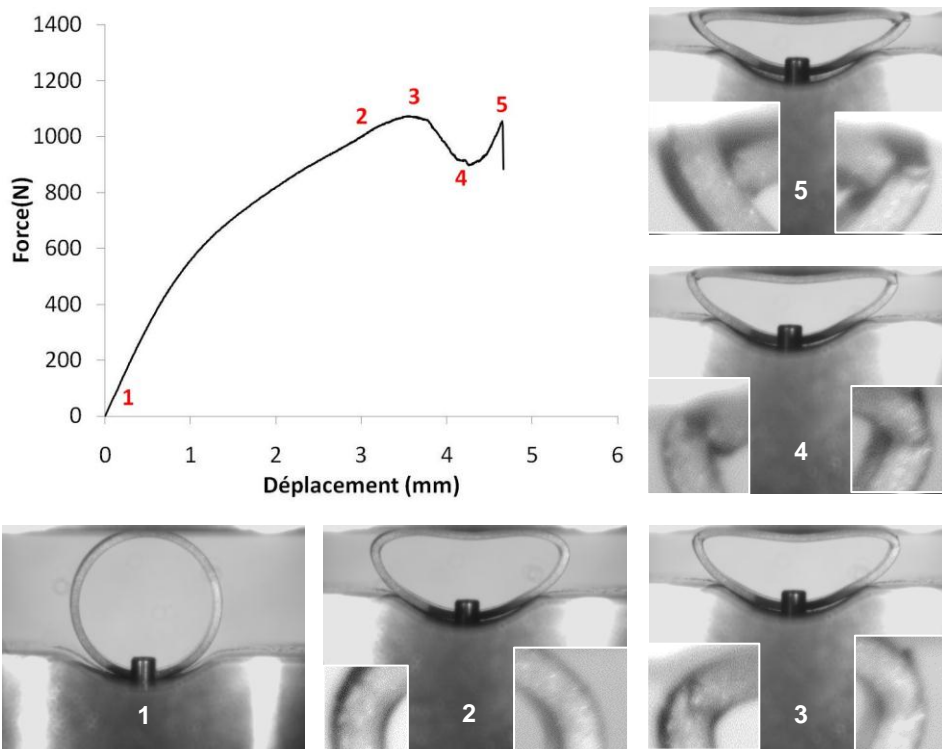
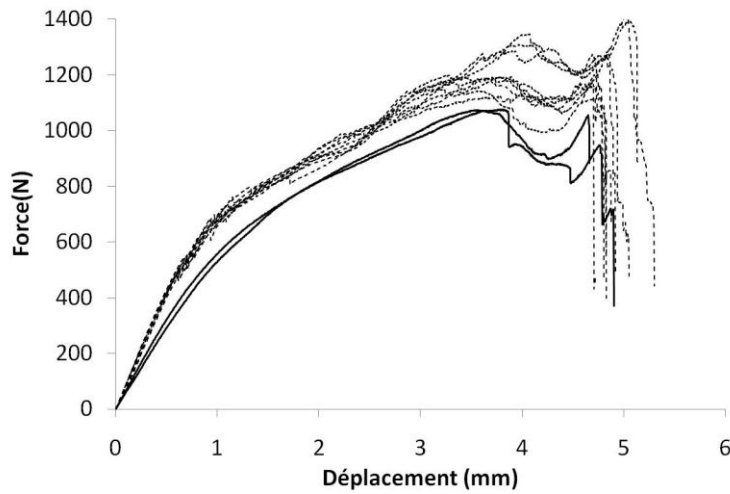


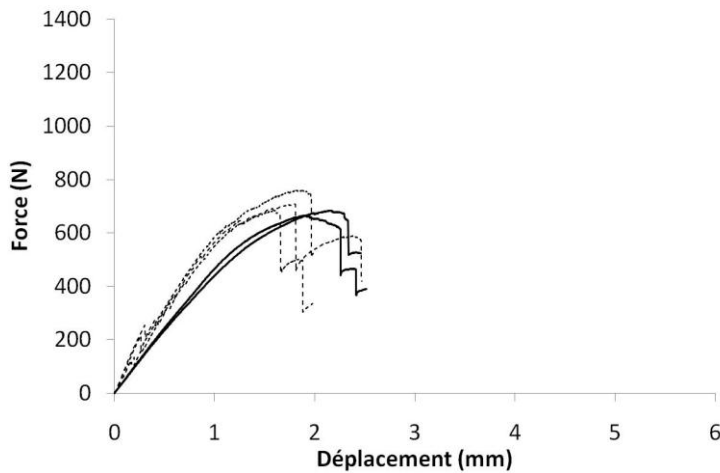
Figure 58 : Courbe force-déplacement pour un essai de compression sur un anneau en Zy-4 oxydé en simple face à 1100°C pendant 467s (ECR=6%) et sablé, corrélée avec les images obtenues lors de l'enregistrement de l'essai.

Nous avons observé l'amorçage des fissures dans la couche ex-β, aux équateurs, au pas 2, à environ la même valeur de déplacement de la traverse que pour les courbes obtenues par RCT sur des gaines non sablées. Des fissures localement traversantes ont été observées au pas 3 (pour les deux équateurs), et une première fissure traversante sur toute la longueur de l'anneau a

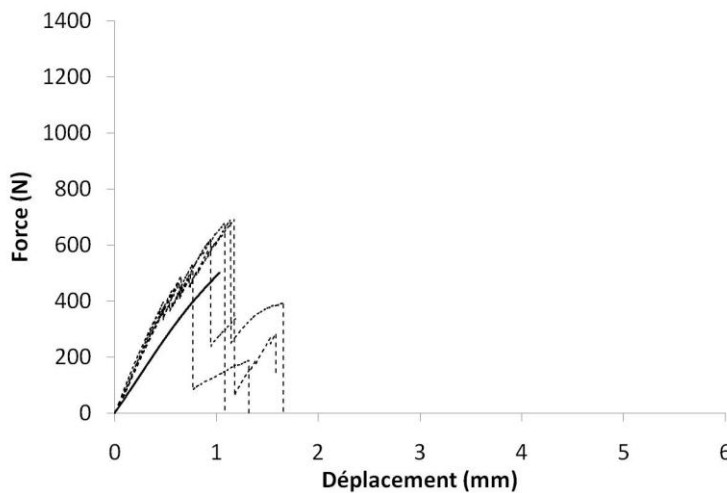
été identifiée au pas 4. La Figure 59 présente les courbes de force déplacement obtenues par RCT sur gaine sablée comparées aux courbes obtenues sur gaine intégrè, pour chacun des trois cas étudiés.



467s à 1100°C (6% ECR)



1349s à 1100°C (10% ECR)



520s à 1200°C (10% ECR)⁸

Figure 59 : Courbes de force-déplacement obtenues par RCT sur les gaines sablées (en lignes continues) et sur gaines intégrès (en pointillés).

⁸ L'arrêt intempestif de l'essai fait que, pour ce cas d'étude, nous ne disposons pas de la courbe complète d'un échantillon sablé rompu.

Trois points ressortent de la comparaison des courbes obtenues par RCT sur des gaines sablées et de celles sur des gaines intègres (Figure 59), ainsi que de l'analyse de la corrélation entre les images filmées et les courbes :

- La raideur apparente diminue systématiquement lorsqu'on enlève les couches fragiles, ce qui nous permet de conclure que les couches fragiles contribuent à la rigidité de l'éprouvette et augmentent le module d'élasticité apparent.
- La partie non linéaire de la courbe de force-déplacement est, en général, pilotée par le comportement de la couche α - β de la gaine. Néanmoins, le niveau de force atteint est plus faible pour la gaine sablée, ce qui indiquerait une contribution mécanique de l'une ou des deux couches fragiles sur la gaine intègre.
- Pour le cas le plus ductile, le moment de l'amorçage de la fissuration macroscopique dans la couche α - β , ainsi que l'effet de la propagation des fissures sur la forme de la courbe, restent inchangés lorsqu'on enlève les couches fragiles.

3.4. Conclusion : Bilan expérimental de l'endommagement de la gaine sollicitée par essai de compression d'anneaux

Les expériences exposées dans ce chapitre avaient pour but de proposer une méthode de dépouillement des essais RCT post-oxydation et trempe des gaines en Zy-4. Nous nous sommes aussi intéressés au rôle que jouent les couches fragiles dans le comportement mécanique de la gaine stratifiée au cours de l'essai, car l'interprétation des RCT en dépend.

Dans le chapitre précédent nous avons exposé des observations en microscopie optique, ainsi qu'une expérience de mesure de contraintes résiduelles par diffraction de neutrons et un calcul de contraintes thermiques liées à la trempe, qui nous ont amené à supposer que la couche α (O) est endommagée suite à la trempe, avant l'essai de compression d'anneaux. Des observations au MEB réalisées avant RCT nous avaient aussi permis de confirmer la fissuration de la couche α (O) suite à la trempe.

Par la suite, des essais de compression d'anneaux complets et interrompus, réalisés sur des gaines oxydées et trempées selon différentes conditions, ont été filmés. Ces expériences, ainsi que les fractographies post-essais interrompus nous ont permis de mieux comprendre le déroulement de l'essai : nous avons montré que les petites chutes de force en début d'essai, qui ont pour effet de changer légèrement la pente de la courbe de force-déplacement, correspondent à l'écaillage de la zircone avec changement de point d'appui, d'abord au pôle supérieur, puis à l'inférieur. L'endommagement de la zircone au niveau de l'équateur a été mis en évidence en début de la zone plastique de la courbe de force-déplacement. Nous avons aussi constaté que la première chute significative de force sur la courbe de force déplacement correspond à la présence d'au moins une fissure traversante pour les trois cas d'étude « fragiles » (oxydation à 1100 et 1200°C à 10% ECR, et oxydation à 1200°C à 17% ECR), et que l'amorçage et la propagation stable de la fissuration dans la couche α - β n'a lieu que pour des éprouvettes peu oxydées (ductiles, ECR=6%).

Des essais de compression d'anneaux réalisés sur des gaines oxydées et trempées dans différentes conditions, auxquelles nous avons enlevé les couches fragiles externes par sablage, ont aussi été réalisés. Nous avons observé que lorsqu'on enlève les couches de zircone et d' α (O), la rigidité de l'anneau oxydé et trempé en conditions APRP est réduite. Nous avons également constaté que ces couches ne contribuent pas au comportement plastique de la gaine, ni ne jouent de rôle sur l'amorçage macroscopique ou la propagation des fissures dans la couche α - β . Ces observations nous ont permis de conclure que les couches fragiles externes ne contribuent qu'à la raideur de l'éprouvette, et que le comportement plastique de la gaine stratifiée est piloté par la couche α - β .

Chapitre 4 : Modèle de comportement proposé et simulations par éléments finis de l'essai de compression d'anneaux

Ce chapitre présente un modèle par éléments finis de l'essai de compression d'anneaux sur gaine oxydée et trempée en conditions APRP. L'objectif de cette partie est de proposer un modèle appuyé sur les acquis expérimentaux qui permette d'expliquer le scénario de rupture de la gaine sollicitée en compression d'anneaux, pour finalement proposer un critère de rupture de la gaine oxydée et trempée en conditions APRP.

Chapitre 4 : Modèle de comportement proposé et simulations par éléments finis de l'essai de compression d'anneaux	75
4.1. Revue bibliographique sur la simulation de l'essai de compression d'anneaux	77
4.2. Aspects généraux du modèle	78
4.2.1. Hypothèses de calcul	79
4.2.2. Maillage et conditions aux limites	79
4.2.3. Prise en compte de la complaisance du dispositif d'essai	80
4.3. Modélisation du comportement de la gaine oxydée et testée par RCT	81
4.3.1. Détermination de la loi de comportement de la couche ex- β	81
4.3.2. Modélisation de la couche de phase $\alpha(O)$ pré-endommagée	85
4.3.3. La couche externe de zircone	88
4.4. Scénario de rupture de la gaine oxydée et trempée en conditions APRP et testée par RCT	88
4.5. Critère de rupture préliminaire pour la gaine oxydée et trempée en conditions APRP	94
4.6. Simulation préliminaire d'un RCT sur gaine oxydée et hydrurée	96
4.7. Conclusion : Scénario de rupture de la gaine	99

4.1. Revue bibliographique sur la simulation de l'essai de compression d'anneaux

L'essai de compression d'anneaux sur gaine en alliage de Zr est utilisé depuis les années 70 pour analyser le comportement mécanique des gaines fragilisées en fonctionnement nominal du réacteur ou en situation accidentelle. Néanmoins, les modélisations par éléments finis de ces essais, qui permettent d'améliorer leur compréhension, ne se sont développées que récemment, avec le développement des moyens de calcul.

La plupart des dispositifs d'écrasement utilisés pour le RCT, sont équipés de plateaux plats, qui introduisent une symétrie supplémentaire à l'essai par rapport à la configuration de notre étude, avec un berceau dans le plateau inférieur. En conséquence, les modèles de ces essais sur gaines en alliages de Zr qu'on trouve dans la littérature réduisent toujours la géométrie à simuler à 1/4 de l'anneau en 2D (1/8 en 3D), tenant explicitement compte des plateaux plats du dispositif et du contact (MARTIN et al., 2009) ou en les simulant par une charge ponctuelle appliquée sur l'anneau (SONNENBURG et al., 2009).

Par exemple, DAUM et al. (2009) ont mis au point un modèle pour simuler les essais de compression d'anneaux réalisés sur gaine en Zy-4 irradiée, hydrurée et oxydée afin de caractériser leur comportement en conditions RIA. Dans leur modèle, l'anneau est considéré stratifié avec une couche d'oxyde externe. Ils ont modélisé 1/4 de l'anneau stratifié avec des couches homogènes qui prennent en compte l'anisotropie du comportement mécanique du matériau, ainsi que le plateau du dispositif. La simulation faite en 3D permet la simulation des fissures par création de surfaces libres. Pour leur part, BUSSE et al. (2009), ont élaboré un modèle pour simuler, dans le cadre des études associées au RIA, les essais de compression d'anneaux sur gaine en Zy-4 oxydée à 475°C, stratifiée avec une couche d'oxyde en interne et une autre en externe. Ils ont modélisé 1/4 de l'anneau stratifié avec des couches homogènes, ainsi que le plateau et le contact. Ils ont comparé une simulation en 2D de l'essai en déformations planes avec une simulation en 3D. Ils ont montré que l'hypothèse de déformations planes reproduit correctement le comportement sur 70% de la longueur de l'anneau pour un anneau long de 10mm. Dans ces deux travaux (DAUM et al., 2009 ; et BUSSE et al., 2009) des simulations où on enlève partiellement les couches d'oxyde afin de simuler correctement l'endommagement subi au cours de l'essai ont été utilisées.

Seuls deux auteurs ont modélisé le RCT sur gaine oxydée en conditions APRP. D'une part, SONNENBURG et al. (2009) ont proposé un modèle qui simule le RCT sur gaine oxydée en double face. Leur modèle, développé en 2D, regroupe les couches fragiles de la gaine (zircone et $\alpha(O)$) en une seule couche fragile, et suppose que chacune des trois couches homogènes résultantes (couches fragiles externe et interne, et couche ex- β) est homogène. A notre connaissance, le travail développé par STERN (2007), est le seul à avoir proposé un modèle qui simule le RCT sur gaine oxydée en simple face et trempée en conditions APRP.

STERN (2007) a réalisé une modélisation préliminaire par éléments finis d'un essai de compression d'anneaux réalisé à température ambiante sur une gaine oxydée en simple face et trempée. Pour cette modélisation, il a pris en compte le comportement du matériau « stratifié » à l'issue de l'oxydation et de la trempe, chaque couche de matériau étant considérée comme homogène. Dans son modèle, les contraintes initiales sont considérées nulles.

Dans cette simulation préliminaire, la géométrie a été simplifiée d'une telle façon que la simulation n'a été faite que sur un quart d'anneau, sans prendre en compte la géométrie réelle du montage avec un berceau utilisé pour les essais de compression (même dispositif que celui utilisé pour cette étude). L'essai a été simulé par l'application d'une force ponctuelle.

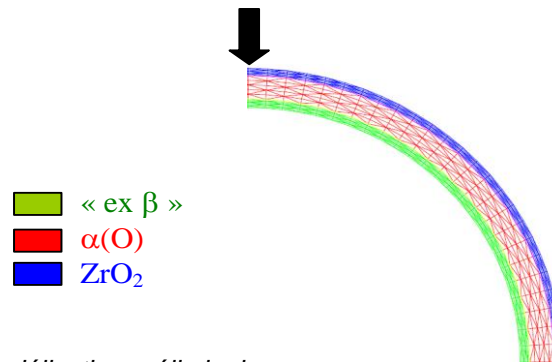


Figure 60 : Schéma de la modélisation préliminaire de l'essai de compression d'anneaux par EF (STERN, 2007).

La figure suivante présente les courbes simulée et expérimentale de force-déplacement pour un essai de compression d'anneaux sur une gaine oxydée à 1100°C pendant 187s :

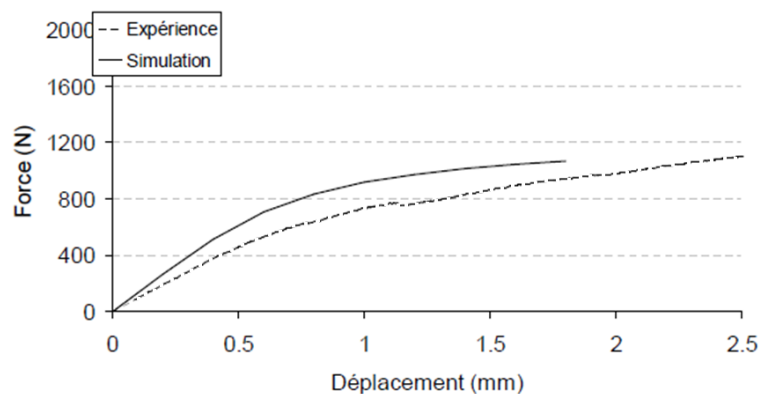


Figure 61 : Comparaison entre la courbe de force déplacement simulée avec le modèle préliminaire du RCT et la courbe expérimentale pour le cas d'une gaine oxydée à 1100°C pendant 187s (STERN, 2007).

Le modèle de STERN (2007) propose une bonne approximation pour la simulation de la courbe de force déplacement. Néanmoins, le contact entre l'éprouvette et les plateaux inférieur et supérieur n'est pas pris en compte, si bien qu'il ne convient que pour les matériaux fragiles ou très peu ductiles. Dans la mesure où l'on s'intéresse à des cas d'étude concernant des gaines avec un comportement global fragile et ductile, il est donc nécessaire de raffiner ce modèle. Nous proposons donc d'utiliser le modèle de STERN (2007) comme point de départ pour y introduire la modélisation explicite du contact entre l'éprouvette et les plateaux d'appui, ainsi que la géométrie du berceau.

4.2. Aspects généraux du modèle

Une démarche de simulation de l'essai de compression d'anneaux avec un modèle par éléments finis a été entreprise dans le cadre de ce travail. Nous avons voulu raffiner le modèle proposé par STERN (2007) afin d'en faire un outil pour la compréhension de l'essai de compression d'anneaux sur gaine post oxydation et trempe en conditions APRP. L'objectif est d'utiliser les acquis expérimentaux pour proposer un modèle qui permette d'expliquer le scénario de rupture des gaines oxydées en conditions APRP et testées par RCT à température ambiante. Dans la mesure où les éprouvettes oxydées à un taux de 17% d'ECR se sont montrées particulièrement fragilisées lors des RCT, nous n'utiliserons pas ce cas d'étude comme un cas de référence pour la mise en œuvre de notre modèle de simulation.

Le modèle proposé dans ce travail ne rend pas compte de l'endommagement proprement dit, ni de la propagation des fissures observés expérimentalement. Nous présentons dans ce paragraphe

les choix de modélisation qui ont été faits, pour raffiner le modèle initial. Les études paramétriques qui justifient ces choix se trouvent en Annexe 7.

Le modèle que nous présenterons par la suite a été développé sous CAST3M 2009.

4.2.1. Hypothèses de calcul

Des hypothèses de calcul ont été faites concernant deux aspects principaux. Le premier aspect concerne la modélisation de la géométrie de l'échantillon et du dispositif d'écrasement modélisée. Pour rappel, BUSSE et al. (2009) ont montré, pour une simulation du RCT prenant en compte une géométrie plate pour les supports du dispositif d'écrasement, que l'hypothèse de déformations planes reproduit correctement le comportement sur 70% de la longueur de l'anneau pour un anneau long de 10mm, l'état de déformation au voisinage des extrémités de l'anneau étant naturellement différent. Un travail précédent a permis d'arriver à la même conclusion pour une simulation prenant en compte le berceau du plateau inférieur du dispositif d'écrasement avec lequel le travail ici présenté a été mené. Ce même travail a permis de montrer que la prise en compte de la friction dans le modèle a un effet négligeable sur la réponse mécanique simulée (LE SAUX, 2009). En conséquence, nous avons choisi de développer notre modèle en **2D**, sous l'hypothèse des **déformations planes** en **grands déplacements**. Le modèle proposé par cette étude prend en compte la géométrie des supports, ce qui implique la modélisation d'un $\frac{1}{2}$ anneau (par symétrie de la géométrie du matériau et du chargement), et du contact entre l'anneau et les supports.

Le deuxième aspect concerne l'état initial de contraintes de la gaine. Suite aux expériences de diffraction de neutrons, aux calculs des contraintes thermiques dues à la trempe, et aux observations en microscopie optique réalisées dans le cadre de cette étude (paragraphe 2.4.3), nous sommes arrivés à la conclusion que la couche $\alpha(O)$ post-trempe est en état de traction et probablement endommagée avant l'essai. Nous avons également conclu que la zircone se trouve en compression suite à la trempe, et que la fissuration de la couche $\alpha(O)$ pourrait contribuer à la relaxation de contraintes de la zircone. L'analyse de la corrélation entre les courbes de force-déplacement et les images filmées, et des fractographies post-essai, nous ont permis de mettre en évidence l'endommagement progressif de la zircone au cours de l'essai : d'abord aux pôles dans la zone élastique de la courbe de force déplacement, puis aux équateurs en début de la zone plastique. Les couches fragiles ne sont donc probablement pas intègres. Dans la mesure où l'endommagement précoce de ces couches entraîne une relaxation des contraintes thermiques liées à la trempe, nous avons considéré dans notre modèle que **l'état initial de contraintes de la gaine est nul**.

4.2.2. Maillage et conditions aux limites

La géométrie a été discrétisée en utilisant des éléments quadratiques sous-intégrés avec 8 nœuds et 4 points de Gauss. Le maillage utilisé est composé d'une part de l'anneau, et d'une autre part des supports du dispositif d'écrasement. La géométrie simulée de l'anneau stratifié prend en compte les couches ex- β , $\alpha(O)$ et zircone seulement. La zone biphasée, observée expérimentalement à l'interphase des couches $\alpha(O)$ et ex- β , n'a été prise en compte que par sa dimension : une demi-épaisseur de la zone biphasée a ainsi été rajoutée à chacune des deux couches partageant l'interface. La discrétisation du maillage de la gaine a été faite en utilisant entre 180 et 210 éléments disposés selon la direction circonférentielle du demi-anneau, 8 éléments dans l'épaisseur de la couche ex- β , 3 dans la couche $\alpha(O)$ et 2 pour la zircone. L'épaisseur des couches a été définie à partir des mesures réalisées dans le cadre d'un travail précédent (MAILLOT et BRACHET, 2007). Nous avons seulement redéfini à partir des fractographies les épaisseurs des couches ex- β et $\alpha(O)$ pour le cas des gaines oxydées 1349s à 1100°C (10% ECR), pour lequel nous avons mis en évidence une sous estimation de l'épaisseur de la zone biphasée par la méthode proposée par MAILLOT et BRACHET (2007) (Figure 54). Le Tableau 7 résume les épaisseurs des couches utilisées pour les simulations de nos cas d'étude.

Cas d'étude	Epaisseurs expérimentales				Epaisseurs simulées		
	Ep. Ex- β (μm)	Ep. biphasée (μm)	Ep. Alpha(O) (μm)	Ep. Zircone (μm)	Ep. Ex- β (μm)	Ep. Alpha(O) (μm)	Ep. Zircone (μm)
467s à 1100°C (6% ECR)	476	21	39	42	486	50	42
1349s à 1100°C (10% ECR)	400	42	78	74	421	99	74
520s à 1200°C (10% ECR)	415	20	85	71	425	95	71

Tableau 7 : Epaisseurs des couches utilisés pour les simulations par cas d'étude.

Le maillage des supports du dispositif d'écrasement prend en compte leur géométrie, et en particulier le berceau du plateau inférieur.

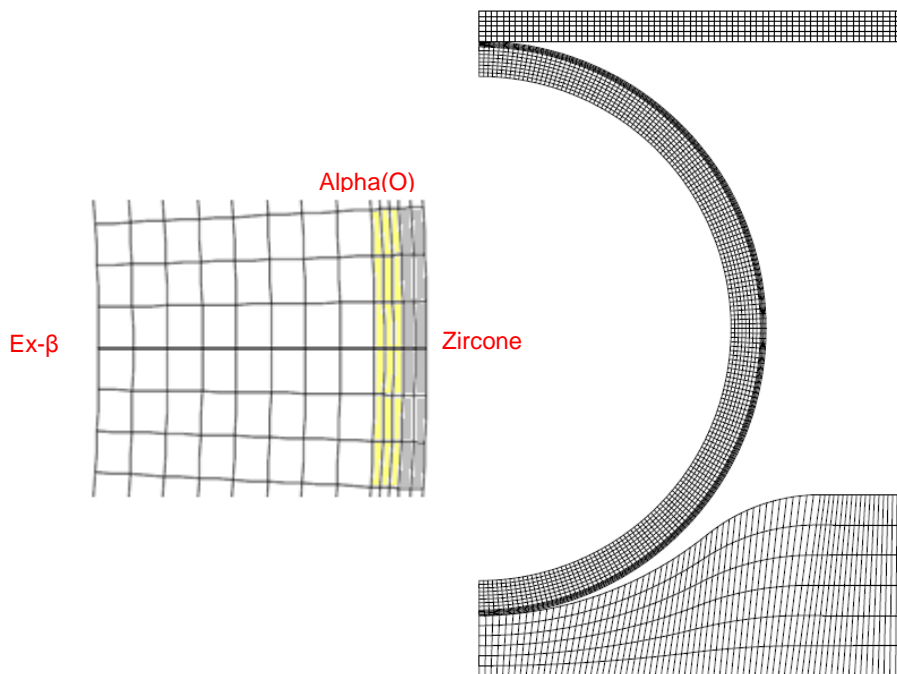


Figure 62 : Maillage pour la simulation d'un RCT sur gaine oxydée 467s à 1100°C (6% ECR).

Des conditions aux limites de symétrie standard sont définies (déplacement normal aux plans de symétrie nul). Le plateau inférieur est fixe. Le déplacement est imposé au plateau supérieur par des pas de déplacement d'une amplitude de 0,01mm. Un **contact parfait** (sans frottement) est introduit entre l'échantillon et les plateaux.

4.2.3. Prise en compte de la complaisance du dispositif d'essai

Les paramètres introduits dans le modèle pour simuler le matériau des plateaux correspondent à ceux d'un acier isotrope avec un module d'Young de 220GPa et un coefficient de Poisson de 0,3.

Dans la mesure où le déplacement effectivement appliqué à l'anneau n'a pas été mesuré durant les essais, les courbes de force déplacement sont tracées à partir du déplacement de la traverse. En conséquence, le déplacement utilisé pour tracer les courbes expérimentales est strictement lié à la raideur intrinsèque à la machine, et au dispositif. Nous avons donc appliqué une correction

aux courbes simulées, pour pouvoir les comparer avec les courbes expérimentales obtenues dans le cadre de cette étude, et en général, avec les courbes de la base des données du CEA.

Pour accéder à la raideur de l'ensemble de la machine de traction et du dispositif d'écrasement, un essai de compression a été réalisé à température ambiante sur un cylindre en matériau à haute résistance mécanique (déformation élastique du cylindre négligeable par rapport à celle du dispositif). La courbe de force déplacement obtenue est présentée en Figure 63. La raideur de l'ensemble, pour des efforts inférieurs à 2 kN (effort maximal atteint lors des essais de compression), a été estimée à environ 5500N/mm à partir de cette courbe.

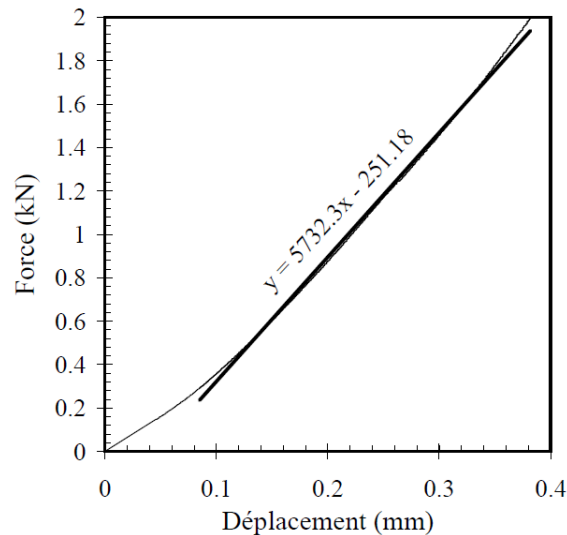


Figure 63 : Courbe de force déplacement d'un essai de compression réalisé à 20°C sur un cylindre en matériau à haute résistance mécanique (LE SAUX, 2009).

La correction des courbes simulées a été réalisée systématiquement en assimilant l'échantillon et l'ensemble dispositif d'écrasement et machine de traction à deux ressorts en série. Cette correction a été appliquée aux courbes que nous présenterons par la suite.

4.3. Modélisation du comportement de la gaine oxydée et testée par RCT

Cette démarche a été développée en trois temps. Tout d'abord, nous avons ajusté les lois de comportement de la couche ex- β disponibles dans la littérature et obtenues sur des éprouvettes sous forme de plaquettes, pour rendre compte du comportement des gaines. Ensuite, nous avons modélisé la contribution des couches externes au comportement mécanique de la gaine stratifiée suite à la trempe, en nous appuyant sur les observations expérimentales. Nous avons donc d'abord modélisé la couche $\alpha(O)$, car nous avons suffisamment d'éléments pour caractériser correctement son comportement ainsi que son endommagement. Finalement, nous avons abordé la modélisation de la couche de zircone. Dans la mesure où les propriétés de cette couche restent mal connues, nous présenterons le choix du modèle retenu pour proposer un scénario de rupture de la gaine après oxydation et trempe testée par RCT.

4.3.1. Détermination de la loi de comportement de la couche ex- β

Nous avons vu au paragraphe 2.4.2 que la plupart des paramètres utilisés dans la littérature pour décrire le comportement mécanique de la couche ex- β varie avec la teneur en oxygène. Nous avons également vu que dans le cadre d'une étude précédente il a été constaté que la couche ex- β présente un faible gradient d'oxygène à travers son épaisseur (MA et al., 2008), si bien qu'elle peut être supposée homogène. Nous avons alors utilisé la teneur moyenne

en oxygène dans la couche, estimée à partir des profils d'oxygène obtenus par EPMA dans le cadre de l'étude de MA et al. (2008), pour évaluer les propriétés mécaniques de cette couche.

Le modèle utilisé rend compte d'un comportement élasto-plastique avec écrouissage, qu'on suppose isotrope pour la simulation de l'essai. Le comportement élastique de la couche ex- β , a été défini à l'aide d'un coefficient de Poisson d'une valeur constante de 0,35 (quelle que soit la teneur en oxygène) adopté par STERN (2007), et de l'évolution du module d'Young proposée par BUNNELL et al. (1977), en fonction de la teneur en oxygène. La Figure 64 présente cette évolution :

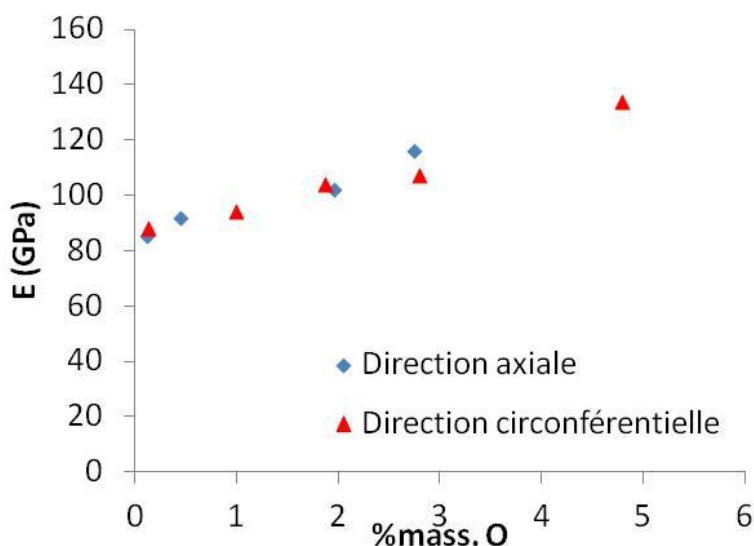


Figure 64 : Evolution du module d'Young en fonction de la teneur en oxygène à température ambiante après passage à haute température (800- 1070°C), suivant les sens axial et circonférentiel de la gaine (BUNNELL et al., 1977).

En ce qui concerne le comportement plastique, nous avons présenté aux paragraphes 2.4.2.2 et 2.4.2.3, deux lois de comportement proposées par STERN (2007) et JESSON (2011) pour la couche ex- β . Ces deux lois ont été obtenues à partir des matériaux modèles élaborés sous forme de plaquettes. Dans la mesure où la texture de la couche ex- β n'est pas la même pour une gaine (très texturée) que pour une plaquette (isotrope) (BECHADE, 2010), il est possible qu'il y ait un décalage entre le comportement décrit par ces lois et le comportement réel de la couche ex- β de la gaine oxydée. Nous avons alors entrepris une démarche pour déterminer la loi qui décrit le mieux le comportement de la couche ex- β de la gaine. Pour y parvenir, nous avons utilisé le modèle par éléments finis de l'essai de compression d'anneaux pour simuler les courbes expérimentales de force-déplacement des essais menés sur les gaines sablées. Nous supposons pour les simulations que la gaine n'est constituée que de la couche ex- β . Pour chacune des courbes, des simulations ont été réalisées avec les deux lois de comportement disponibles, en prenant en compte l'épaisseur réelle de la gaine après sablage. La Figure 65 illustre la comparaison entre les courbes expérimentales et les courbes simulées pour chacun des trois cas d'étude pour lesquels nous disposons de courbes expérimentales de RCT sur gaine sablée. La totalité des courbes se trouve en Annexe 7.

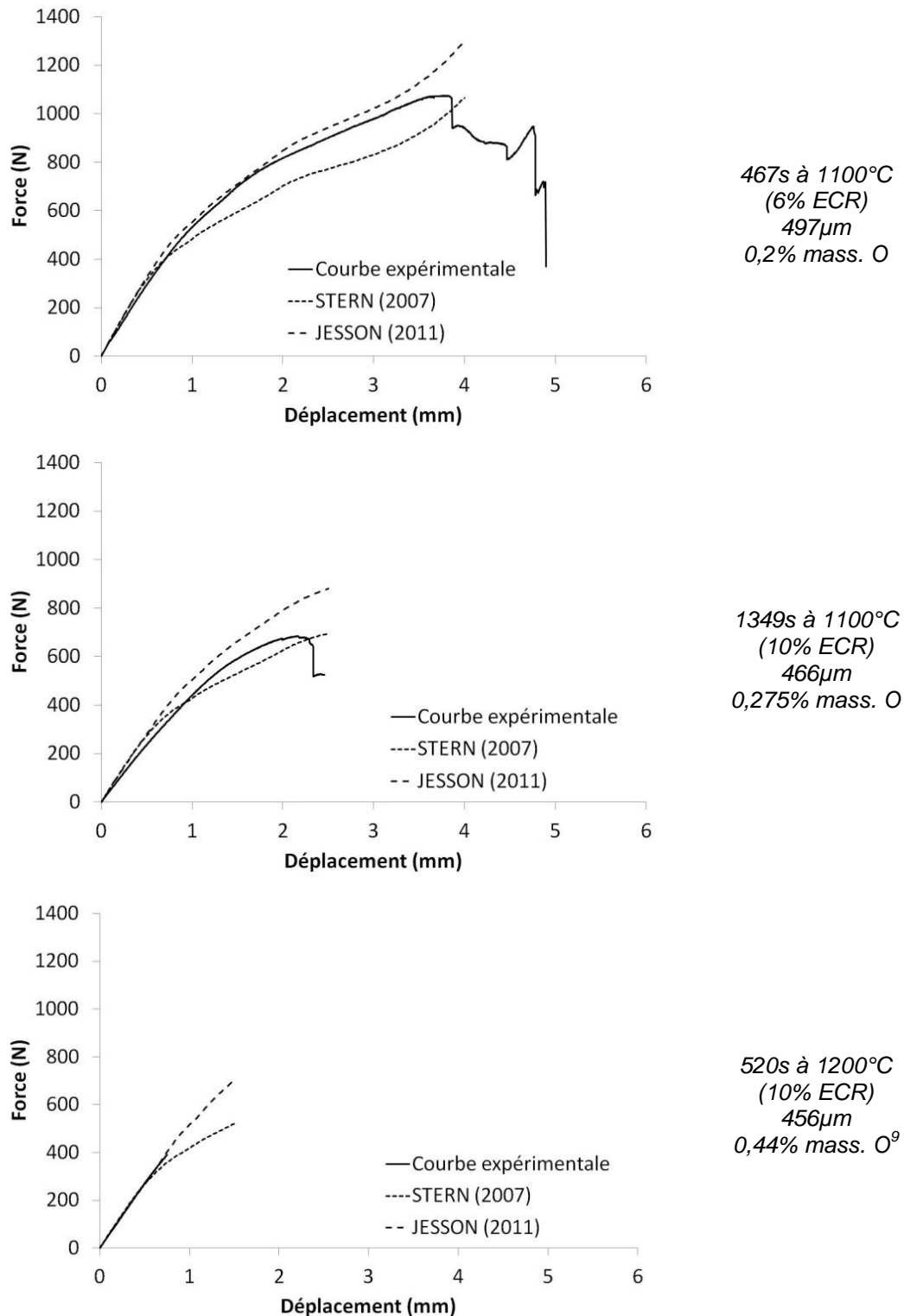


Figure 65 : Comparaison entre les courbes expérimentales et les courbes simulées pour des gaines préparées dans les conditions correspondant à nos trois cas d'étude, puis sablées. La teneur moyenne en oxygène de la couche ex-β est indiquée.

⁹ Cette teneur en oxygène se trouve en dehors du domaine de validité de la loi de comportement plastique de la couche ex-β proposée par JESSON (2011), si bien que la courbe simulée a été obtenue par extrapolation.

Pour les cas oxydés 467s à 1100°C (6% ECR) et 520s à 1200°C (10% ECR), nous observons sur la partie élastique de la courbe un bon accord entre la raideur de la courbe expérimentale et celle des courbes simulées. Nous constatons également un meilleur accord entre la courbe expérimentale et la courbe simulée avec la loi proposée par JESSON (2011), qu'entre la courbe expérimentale et la courbe simulée avec la loi proposée par STERN (2007).

Pour le cas d'une gaine oxydée 1349s à 1100°C (10% ECR) un écart important entre les courbes expérimentales et simulées est constaté dans la zone élastique de la courbe, alors que pour la zone plastique il est difficile de choisir la loi qui simule le mieux la courbe expérimentale. Pour rappel, contrairement aux deux autres cas, les tronçons de gaine oxydés 1349s à 1100°C n'ont pas pu être correctement sablés. L'épaisseur de la gaine après sablage était supérieure d'environ 30µm à celle attendue (Tableau 6), ce qui nous indique, qu'en plus de la zone biphasée, une partie de la couche $\alpha(O)$ est restée adhérente au substrat de phase ex- β suite au sablage. Or, nous pouvons considérer que l'épaisseur adhérente de phase $\alpha(O)$ fragile est fortement endommagée suite au sablage, et ne contribue pas à la tenue mécanique de l'éprouvette, alors que la couche ex- β et la zone biphasée y contribuent. Dans la mesure où nous avons choisi de modéliser la moitié de la zone biphasée comme une couche $\alpha(O)$, nous présenterons au paragraphe 4.3.2 le détail de cette couche qui a été utilisée exceptionnellement pour simuler ce cas. La courbe de force déplacement obtenue avec la loi de comportement plastique de la couche ex- β proposée par JESSON (2011) est présentée en Figure 66 :

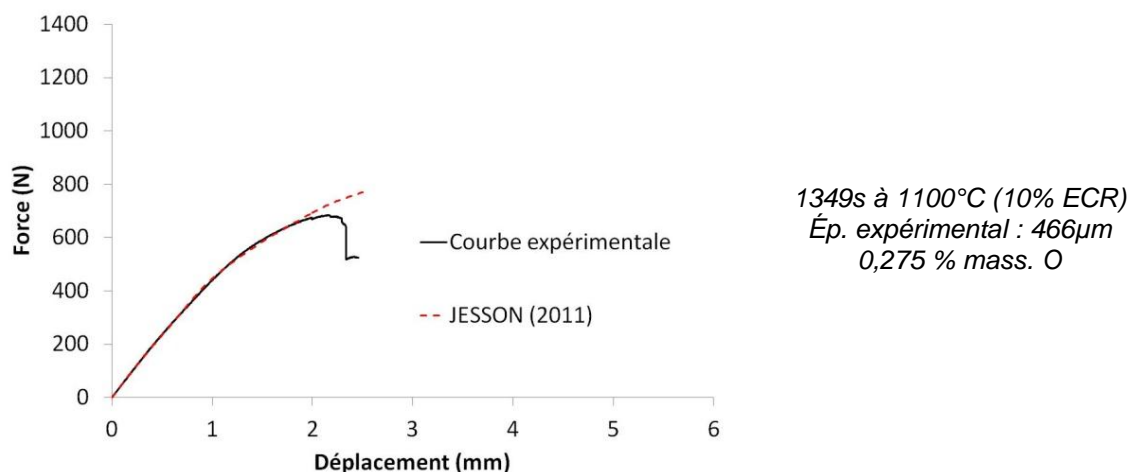


Figure 66 : Courbe de force-déplacement simulée pour le cas d'une gaine oxydée 1349s à 1100°C (10% ECR) en supposant que seule la couche ex- β et la zone biphasée contribuent à la tenue mécanique, comparée à la courbe expérimentale d'une gaine sablée de 466µm d'épaisseur.

Nous observons que, sous ces hypothèses, la courbe simulée avec la loi proposée par JESSON (2011) est en bon accord avec la courbe expérimentale. Nous retiendrons donc, pour la suite, que les lois de comportement de JESSON (2011) caractérisent correctement le comportement plastique de la couche ex- β de la gaine.

A titre indicatif, la contrainte principale maximale, ainsi que la déformée sont illustrées en Figure 67 pour la simulation d'un RCT réalisé sur une gaine sablée ayant subi une oxydation pendant 467s à 1100°C (6% ECR) et une trempe.

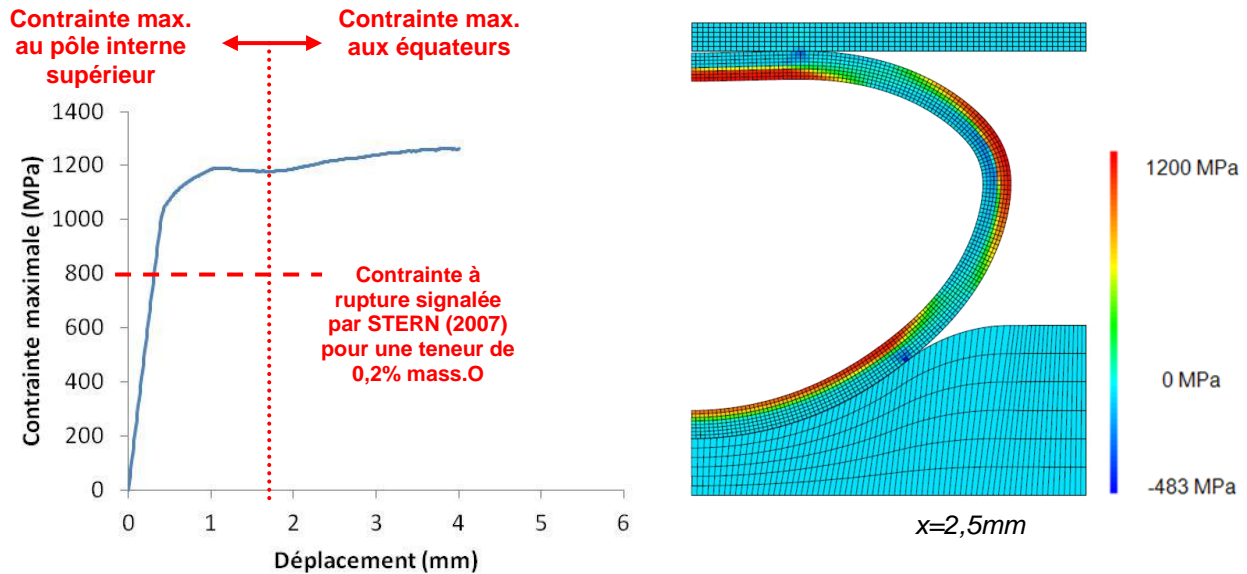


Figure 67 : Evolution simulée de la contrainte principale maximale σ_{11} en fonction du déplacement de la traverse, et illustration de la déformée à 2,5mm de déplacement de la traverse avec cartographie de la contrainte principale σ_{11} pour une gaine oxydée 467s à 1100°C (6% ECR), puis sablée, avec une épaisseur de 497 μm , et une teneur moyenne de 0,2 % mass. O.

Les régions les plus fortement sollicitées en traction se trouvent au niveau de l'équateur, sur la face extérieure de l'anneau, et au niveau du pôle supérieur, sur la face intérieure de l'anneau. Lorsque la traverse se déplace, la contrainte (et la déformation) maximale est atteinte d'abord au pôle interne supérieur, puis à l'équateur, sur la face extérieure de l'anneau.

4.3.2. Modélisation de la couche de phase $\alpha(\text{O})$ pré-endommagée

Nous avons vu que la phase $\alpha(\text{O})$ présente un comportement élastique fragile (§2.4.2.4). Nous avons également constaté que la couche $\alpha(\text{O})$ est formée de grains dont la taille correspond généralement à l'épaisseur de la couche, et qui présentent une forte texturation cristallographique. Dans la mesure où le comportement élastique du zirconium à l'échelle du cristal reste proche de l'isotropie (CHUNG et BUESSEM, 1967; FISHER et RENKEN, 1964), nous pouvons supposer que la phase $\alpha(\text{O})$ peut être modélisée avec un modèle de comportement élastique isotrope.

Pour rappel, nous avons vu que la couche $\alpha(\text{O})$ présente un gradient d'oxygène dans l'épaisseur, et que ce gradient a une forte influence sur certaines propriétés mécaniques du matériau. Le modèle de comportement que nous avons introduit dans le calcul EF pour modéliser cette couche, a été défini à l'aide d'un coefficient de Poisson d'une valeur constante de 0,35 (quelle que soit la teneur locale en oxygène) adopté par STERN (2007), et de l'évolution du module d'Young proposée par BUNNELL et al. (1977), à température ambiante, en fonction de la teneur locale d'oxygène (jusqu'à 4,79% mass. O).

Un profil d'oxygène obtenu par microsonde de Castaing dans une étude précédente (MA et al., 2008) a été simplifié pour calculer le profil du module d'Young à travers l'épaisseur de la couche. Le profil simplifié suppose une évolution linéaire de la teneur locale en oxygène à travers l'épaisseur de la couche $\alpha(\text{O})$. La valeur maximale est systématiquement fixée à 4,79% mass. O, afin d'éviter d'extrapoler avec l'évolution proposée par BUNNELL et al. (1997) lorsqu'on évalue le module d'Young à partir de la teneur locale en oxygène. La valeur minimale est définie par la teneur moyenne en oxygène de la couche $\alpha\beta$ (elle est donc légèrement sous-estimée). La densité du maillage introduite dans la couche $\alpha(\text{O})$ permet de définir des valeurs aux points intermédiaires. La Figure 68 montre un exemple de discrétisation du profil d'oxygène pour une gaine oxydée 1349s à 1100°C (10% ECR) et trempée.

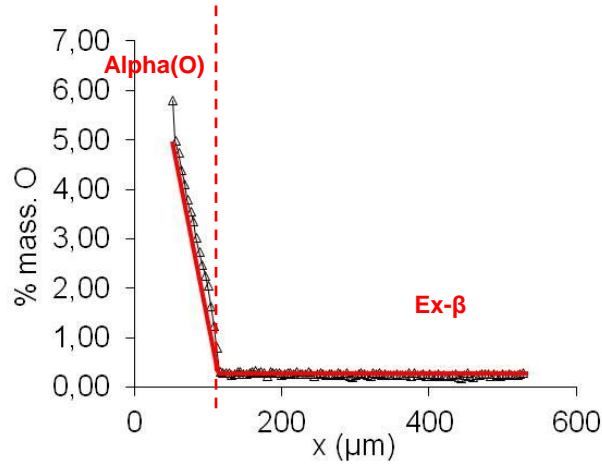


Figure 68 : Discretisation du profil d'oxygène (en rouge) d'une gaine oxydée 1349s à 1100°C (10% ECR) et trempée, pour la simulation du RCT, obtenue à partir du profil obtenu par microsonde électronique (en noir).

Pour modéliser correctement la couche $\alpha(O)$, nous devons prendre en compte le fait qu'elle est endommagée avant le début de l'essai de compression d'anneaux. Nous avons constaté précédemment que, même si elle reste adhérente, la couche $\alpha(O)$ présente des fissures radiales suite à la trempe, ce qui indique que sa contribution mécanique n'est pas la même suivant les directions r , θ et z de la gaine : pendant l'essai de compression d'anneaux, la couche $\alpha(O)$ serait totalement contributive dans le sens radial (à cause de l'adhérence des grains), mais dans les sens ortho-radial et axial, elle ne serait contributive qu'au niveau des pôles, où les fissures se referment, à cause de la sollicitation locale en compression. Nous avons alors défini un comportement élastique orthotrope pour la couche $\alpha(O)$ afin de simuler ceci :

- Dans la direction radiale nous avons utilisé l'évolution du module d'Young proposée par BUNNELL et al. (1977) (Figure 64), selon la teneur locale en oxygène définie par le profil simplifiée (Figure 68).
- Dans les sens ortho-radial et axial nous avons introduit une dépendance angulaire du module d'Young. Nous garderons aux pôles les valeurs évaluées avec la teneur locale en oxygène à partir de l'évolution du module d'Young proposée par BUNNELL et al. (1977) (zones fortement contributives car les fissures se referment sous la sollicitation en compression). En ce qui concerne les équateurs, un module d'Young très faible (10^{-6} fois moins que le module d'Young du matériau non endommagé) a été défini selon les directions axiale et circonférentielle pour simuler les zones faiblement contributives de la couche (sollicitées en traction pendant l'essai).

La loi de Hooke pour un matériau orthotrope peut s'écrire $\varepsilon = S\sigma$ (S est la matrice de souplesse) :

$$\begin{bmatrix} \varepsilon_{rr} \\ \varepsilon_{\theta\theta} \\ \varepsilon_{zz} \\ \varepsilon_{\theta z} \\ \varepsilon_{rz} \\ \varepsilon_{r\theta} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1/E_r & -\nu_{r\theta}/E_r & -\nu_{rz}/E_r & 0 & 0 & 0 \\ -\nu_{\theta r}/E_\theta & 1/E_\theta & -\nu_{\theta z}/E_\theta & 0 & 0 & 0 \\ -\nu_{zr}/E_z & -\nu_{z\theta}/E_z & 1/E_z & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1/G_{\theta z} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 1/G_{rz} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1/G_{r\theta} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \sigma_{rr} \\ \sigma_{\theta\theta} \\ \sigma_{zz} \\ \sigma_{\theta z} \\ \sigma_{rz} \\ \sigma_{r\theta} \end{bmatrix}$$

Pour modéliser la couche $\alpha(O)$ nous devons prendre en compte que :

- Le modèle EF a été construit sous l'hypothèse de déformations planes :

$$\varepsilon_{zz} = 0 \quad \varepsilon_{\theta z} = 0 \quad \varepsilon_{rz} = 0$$

- La phase $\alpha(O)$ est isotrope, et son module d'Young dépend de la teneur locale en oxygène :

$$E = E(O)$$

$$G = \frac{E(O)}{2(1+\nu)}$$

- L'orthotropie est introduite pour modéliser le comportement de la couche fissurée suivant θ et z . Nous utilisons une fonction angulaire pour définir les zones où la gaine est en traction et en compression pendant le RCT selon les directions θ et z :

$$E_r = E(O)$$

$$E_\theta = E_z = E(O) * f(\alpha)$$

$$\nu_{r\theta} = \nu_{zr} = \nu_{\theta z} = \nu = 0,35$$

$$\nu_{\theta r} = \nu_{rz} = \nu_{z\theta} = \frac{\nu}{f(\alpha)}$$

$$G_{r\theta} = \frac{E_r}{2(1+\nu_{r\theta})} = \frac{E(O)}{2(1+\nu)}$$

Ainsi nous obtenons pour la couche $\alpha(O)$:

$$\begin{bmatrix} \varepsilon_{rr} \\ \varepsilon_{\theta\theta} \\ \varepsilon_{zz} \\ \varepsilon_{r\theta} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \frac{1}{E(O)} & \frac{-\nu}{E(O)} & \frac{-\nu}{E(O)} & 0 \\ -\nu & 1 & -\nu & 0 \\ \frac{E(O)}{E(O)} & \frac{E(O) * f(\alpha)}{E(O) * f(\alpha)} & \frac{E(O) * f(\alpha)}{E(O) * f(\alpha)} & 0 \\ \frac{-\nu}{E(O)} & \frac{-\nu}{E(O) * f(\alpha)} & \frac{1}{E(O) * f(\alpha)} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \frac{2(1+\nu)}{E(O)} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \sigma_{rr} \\ \sigma_{\theta\theta} \\ \sigma_{zz} \\ \sigma_{r\theta} \end{bmatrix}$$

Afin de définir la fonction angulaire $f(\alpha)$, les angles de transition de la zone sollicitée en compression à la zone sollicitée en traction ont été déterminés selon les angles de transition observés pour une simulation d'un RCT sur une gaine où toutes les couches sont supposées non endommagées. La fonction angulaire est alors définie comme suit :

Pôles	$f(\alpha) = 1$	si	$\begin{cases} 55^\circ < \alpha < 90^\circ \\ -90^\circ < \alpha < -45^\circ \end{cases}$
Equateur	$f(\alpha) = 10^{-6}$	si	$-35^\circ < \alpha < 45^\circ$
Zones de transition	interpolation linéaire	si	$\begin{cases} 45^\circ < \alpha < 55^\circ \\ -45^\circ < \alpha < -35^\circ \end{cases}$

Le schéma de la Figure 69 illustre la définition en orthotropie du comportement de la couche $\alpha(O)$:

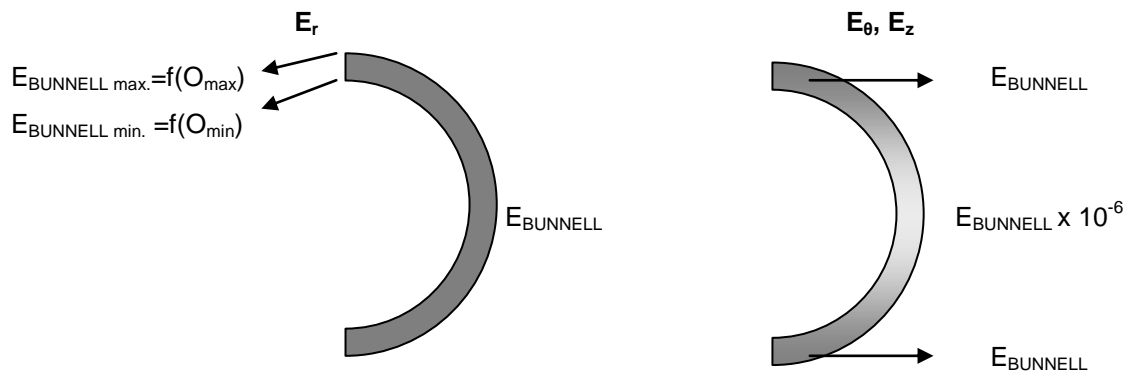


Figure 69 : Schéma de la définition du comportement de la couche $\alpha(O)$ à l'aide d'un comportement orthotrope.

4.3.3. La couche externe de zircone

En partant des résultats obtenus par la simulation des essais de compression sur gaine sablée, nous pouvons affirmer que la couche $\alpha(O)$ peut être considérée comme homogène et que son comportement est correctement modélisé. Nous savons aussi que la couche $\alpha(O)$ est pré-endommagée et nous sommes capables de la modéliser correctement. Concernant la couche de zircone, nous avons constaté l'absence de données caractéristiques de la zircone obtenue par l'oxydation du Zy-4 à haute température dans la littérature (nous pouvons seulement affirmer qu'elle a un comportement élastique fragile à basse température). Par conséquent, nous n'avons pas suffisamment d'éléments pour modéliser précisément son comportement mécanique. Néanmoins, nous pouvons utiliser les résultats expérimentaux des RCT sur gaine intégrée pour ajuster le module d'Young, en utilisant le coefficient de Poisson d'une valeur de 0,3 que SIEFKEN et al., (2001) ont retenu. Pour ajuster le module d'Young de la zircone, nous avons essayé de simuler correctement la pente élastique initiale de la courbe de force déplacement pour nos trois cas d'étude, en modélisant les deux autres couches comme nous l'avons vu dans les deux paragraphes précédents. Nous verrons par la suite qu'une valeur de 100GPa a ainsi été retenue. La prise en compte de l'écaillage et de la fissuration progressive de la zircone au cours des essais de compression est discutée dans la partie suivante.

4.4. Scénario de rupture de la gaine oxydée et trempée en conditions APRP et testée par RCT

Nous proposons par la suite un scénario de rupture de la gaine oxydée et trempée en conditions APRP, testée par essai de compression d'anneaux. Ce scénario, qui se déroule en plusieurs étapes, s'appuie sur le modèle de l'essai de compression d'anneaux et résulte des acquis expérimentaux présentés précédemment, et résumés dans les points suivants :

- Compte tenu des observations faites à partir des examens métallographiques, ainsi que de la confrontation entre le calcul des contraintes thermiques et l'évaluation de la contrainte résiduelle par diffraction de neutrons, nous avons considéré que la **couche $\alpha(O)$ est endommagée avant l'essai, suite à la trempe.**
- Nous avons également observé sur les films des essais, des petits écaillages de la zircone au niveau des pôles qui n'ont néanmoins pas d'influence sur la courbe de force déplacement, dans la zone de la courbe qui correspond à la pente élastique initiale, et ce avant la première chute de force. Nous avons alors conclu que la mise en contact de

l'anneau avec les plateaux, en début du RCT, conduit à une fissuration de la zircone aux pôles.

- Nous avons aussi mis en évidence grâce aux essais filmés un **écaillage de la zircone aux pôles** (avec changement du point d'appui de l'anneau), qui se traduit, sur la courbe de force-déplacement par des petites chutes de force qui ont pour effet de modifier légèrement la pente initiale de la courbe.
- En ce qui concerne la fissuration de la zircone à l'équateur de l'éprouvette, des observations au MEB des éprouvettes issues des essais interrompus à différents stades (suite aux petites chutes de force, en fin de la zone élastique de la courbe de force-déplacement) ont montré que **la zircone non écaillée à l'équateur se fissure progressivement**, jusqu'à aboutir à une fissure équatoriale ouverte au niveau de la zone la plus fortement sollicitée en traction (début de la zone plastique de la courbe de force déplacement). Autour de cette fissure équatoriale ouverte dans la zircone, on observe des réseaux de fissures qui deviennent moins denses lorsqu'on s'éloigne de celle-ci.
- Finalement, on observe **l'amorçage de la fissuration dans la couche ex- β lorsque la déformation et la contrainte à rupture de la couche ex- β sont atteintes**. La propagation stable de la fissuration dans la couche ex- β n'a été constatée que pour des éprouvettes peu oxydées (ductiles, ECR=6%). D'une façon générale, **la première chute significative de force sur la courbe de force déplacement correspond à la présence d'au moins une fissure traversante**, pour les cas à 10 et 17% d'ECR.

Nous présenterons ici le scénario de rupture proposé en l'illustrant par l'analyse du cas d'étude qui correspond à la gaine oxydée 467s à 1100°C (6% ECR). Nous partons du fait que le scénario peut être présenté à partir de « stades » caractéristiques de l'endommagement de la gaine. La définition de ces stades est illustrée en Figure 70 à partir des courbes de force-déplacement obtenues pour le cas d'étude retenu :

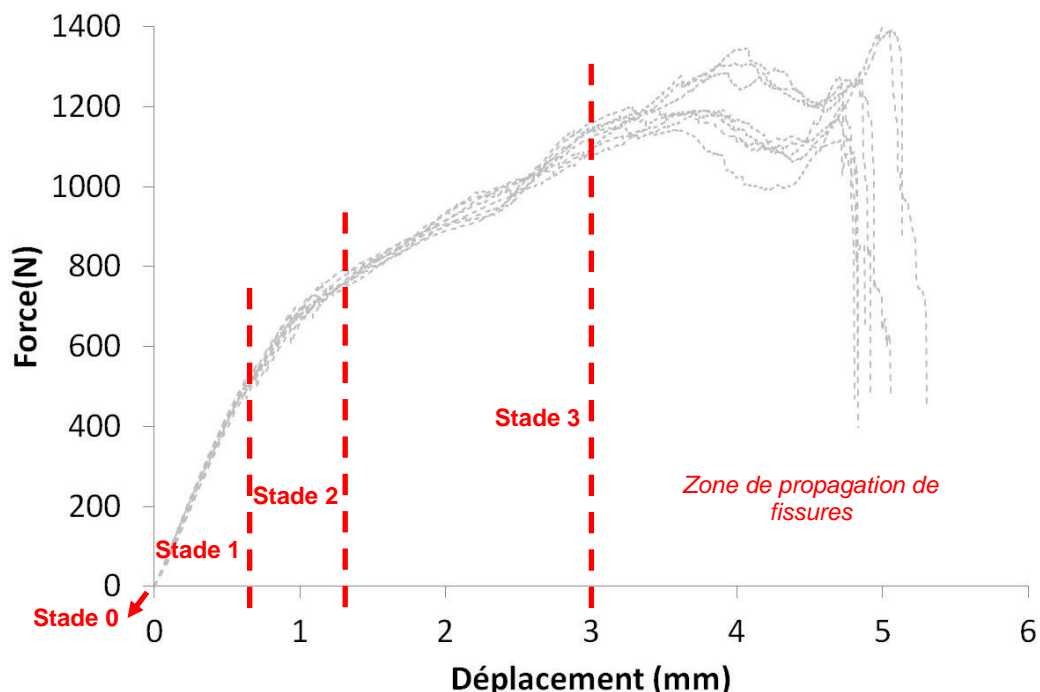


Figure 70 : Définition des stades d'endommagement de la gaine au cours du RCT illustrée à partir des courbes de force-déplacement obtenues par RCT sur gaine oxydée 467s à 1100°C (6% ECR).

Chacun de ces stades est défini comme suit :

- **Stade 0 :** Ce stade fait référence à l'état d'endommagement de la gaine déjà positionnée sur le dispositif d'écrasement, avant le début de l'essai. Deux types d'endommagement sont donc à prendre en compte dès le début de l'essai : le premier concerne la fissuration radiale de la couche $\alpha(O)$ de la gaine, due à la trempe ; et le deuxième est relatif à la fissuration de la zircone aux pôles lors de la mise en contact de l'anneau avec les plateaux du dispositif d'essai.
- **Stade 1 :** Ce stade correspond à la partie de la courbe de force-déplacement qui montre un chargement linéaire de l'anneau en début d'essai. Ce stade s'étend jusqu'à l'apparition des petites chutes de force qui correspondent à l'écaillage de la zircone aux pôles avec un changement du point d'appui de l'anneau, et qui ont pour conséquence de modifier légèrement la pente de la courbe. La couche $\alpha(O)$ présente des fissures radiales qui s'ouvrent sous la sollicitation en traction et se referment en compression.
- **Stade 2 :** Dans cette partie de l'essai la couche de zircone est déjà totalement écaillée aux pôles, et on considère alors qu'elle y est géométriquement absente. La couche de zircone intègre à l'équateur au début de ce stade, se fissure progressivement, jusqu'à aboutir à une fissure équatoriale ouverte au niveau de la zone la plus fortement sollicitée en traction (au début du domaine plastique de la courbe de force déplacement). Autour de cette fissure équatoriale ouverte dans la zircone, on observe des réseaux de fissures qui deviennent moins denses lorsqu'on s'éloigne de celle-ci. La couche $\alpha(O)$ présente des fissures radiales qui s'ouvrent sous la sollicitation en traction et se referment en compression.
- **Stade 3 :** La couche de zircone fissurée à l'équateur (et écaillée pour les forts taux d'oxydation) ne contribue plus à la rigidité de l'anneau au début de ce stade, qui s'étend jusqu'au moment de l'amorçage de la fissuration dans la couche ex- β . La couche $\alpha(O)$ présente des fissures radiales qui s'ouvrent sous la sollicitation en traction et se referment en compression.

Le scénario de rupture proposé se limite aux trois stades (1 à 3) d'endommagement de la gaine compris entre le début de l'essai et l'amorçage de la fissuration dans la couche ex- β . Pour chaque stade, nous avons voulu simuler l'essai sur un anneau modélisé de telle façon que l'endommagement caractéristique du stade soit pris en compte. Dans la mesure où l'endommagement et la géométrie de l'anneau évoluent pendant les stades 1 et 2, nous avons choisi de simuler l'essai en prenant en compte l'état d'endommagement initial et final de l'anneau, de façon à « borner » à chacun de ces stades le comportement de la gaine par les deux simulations. Or, nous avons vu que les propriétés mécaniques (notamment le module d'Young) de la couche de zircone restent mal connues, ce qui nous empêcherait de simuler correctement la réponse mécanique de la gaine au cours des stades 1 et 2 de l'essai, durant lesquels cette couche est encore présente et contributive. Pour cette raison la démarche a consisté à simuler d'abord le troisième stade, en vérifiant que la réponse mécanique de la gaine est correctement reproduite, puis à ajuster le module d'Young de la zircone, pour borner correctement les courbes de force déplacement de nos trois cas d'étude au cours des stades 1 et 2.

Nous avons alors utilisé trois simulations du RCT avec trois modélisations différentes de l'endommagement de l'anneau pour expliquer le scénario de rupture de la gaine. Nous considérons systématiquement que la couche ex- β est homogène et intègre, et que la couche $\alpha(O)$ est pré-endommagée : on suppose que la couche $\alpha(O)$ est orthotrope pour simuler l'endommagement, elle n'est pas contributive selon θ et z (fissures qui s'ouvrent) dans la zone qui se trouve en traction à l'équateur, mais elle est contributive dans la zone en compression (fissures qui se referment). La modélisation de la couche de zircone et la géométrie de la gaine pour les trois simulations sont présentées sur la Figure 71 :

Géométrie 1 (G1) :

L'endommagement initial de la couche de zircone n'étant pas quantifiable ni caractérisable, cette couche est considérée intègre.

Géométrie 2 (G2) :

La couche de zircone s'est écaillée aux pôles et on considère qu'elle y est géométriquement absente. Au niveau de l'équateur elle reste intègre à $\pm 30^\circ$.

Géométrie 3 (G3) :

La couche de zircone s'étant écaillée aux pôles et fissurée aux équateurs, nous considérons qu'elle n'est pas contributive, et géométriquement absente pour la simulation.

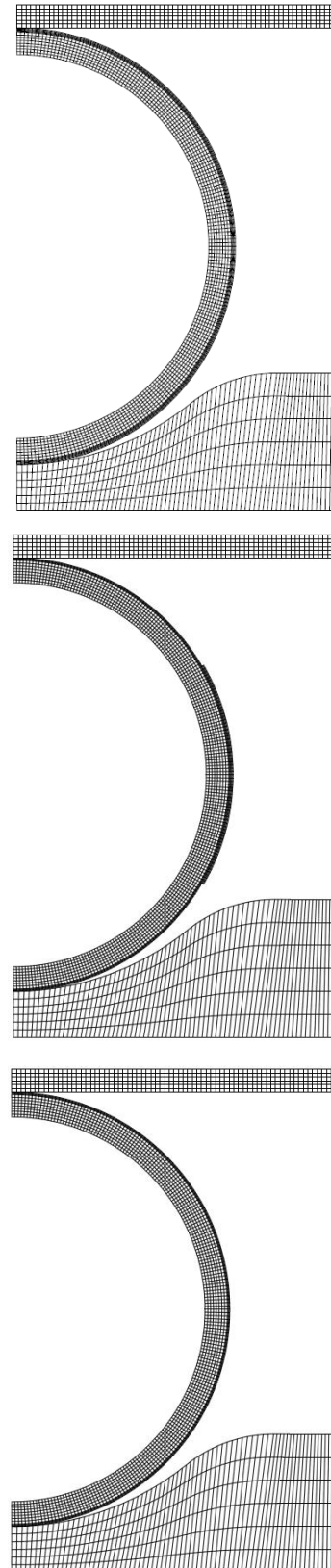


Figure 71 : Modélisation de la couche de zircone et de la géométrie de la gaine pour les trois simulations.

La valeur du module d'Young de la zircone qui nous a permis de borner par la simulation les courbes expérimentales aux stades 1 et 2 de l'essai, est de 100 GPa. Les tronçons des courbes de force déplacement simulés dans les conditions décrites, ainsi que les courbes expérimentales sont présentés dans la Figure 72 pour la gaine oxydée 467s à 1100°C (6% ECR).

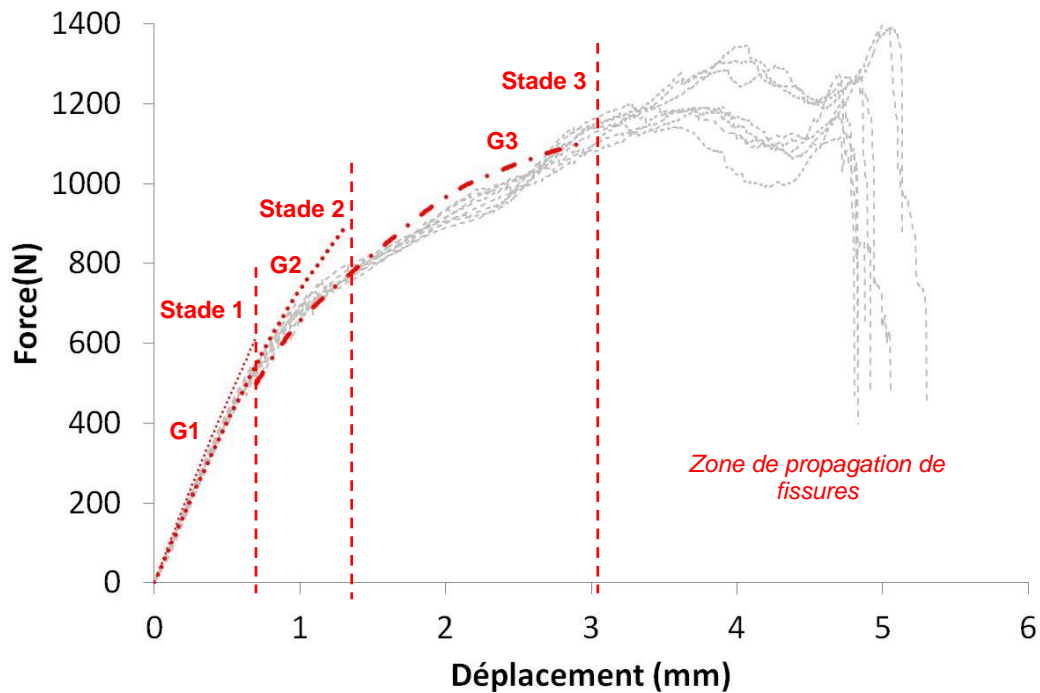


Figure 72 : Simulation du scénario de rupture des gaines oxydées 467s à 1100°C (6% ECR), sollicitées par RCT, selon les 3 stades d'endommagement de la gaine.

De cette façon, les courbes de force déplacement sont bornées au stade 1 par les simulations 1 (la zircone est intègre) et 2 (la zircone n'est plus contributive aux pôles), et au stade 2 par les simulations 2 (la zircone n'est plus contributive aux pôles) et 3 (la zircone n'est plus contributive). Au stade 3, le comportement est correctement reproduit par la simulation 3 (la zircone n'est plus contributive).

La Figure 73 et la Figure 74 illustrent des comparaisons entre la déformée simulée (avec le champ de contrainte principale σ_{11}) et la déformée expérimentale, à des déplacements de la traverse de 0,7mm et 3mm.

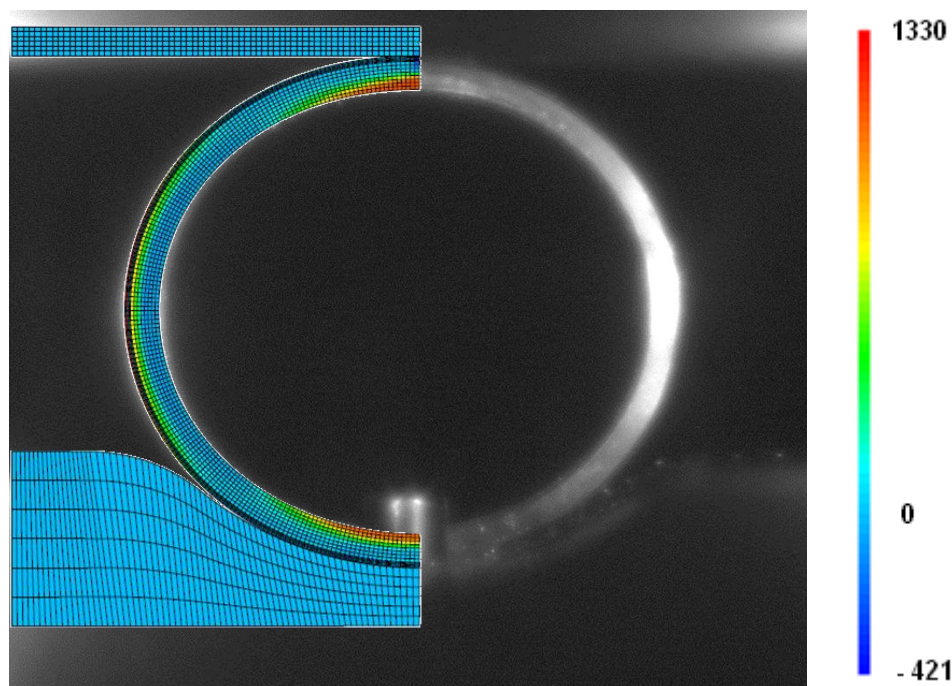


Figure 73 : Déformée simulée, déformée expérimentale et contrainte principale σ_{11} (MPa) à un déplacement de la traverse de $x=0,7\text{mm}$, simulation avec la géométrie 1.

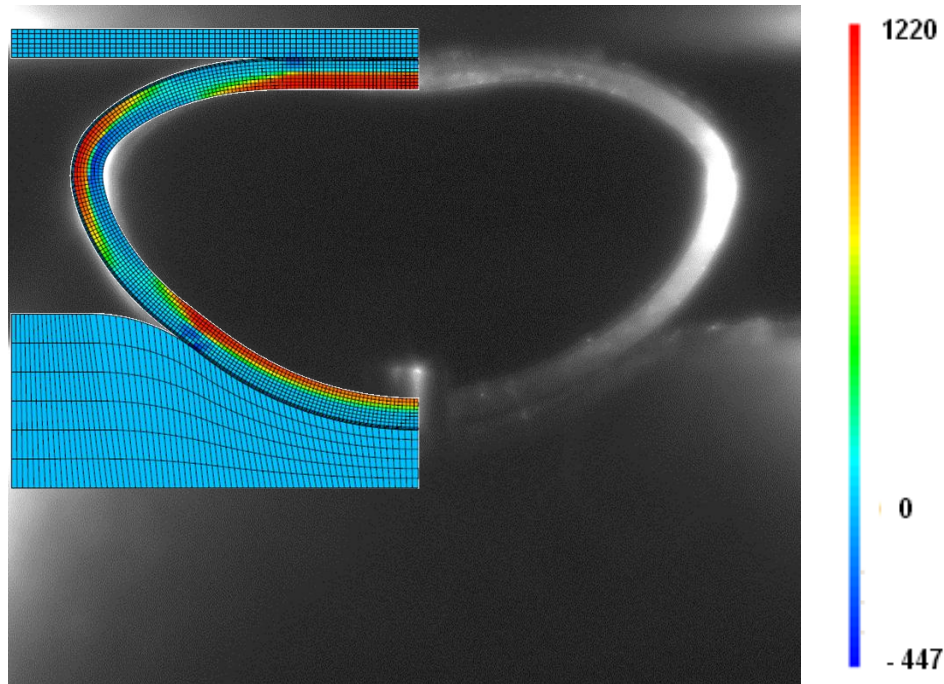


Figure 74 : Déformée simulée, déformée expérimentale et contrainte principale σ_{11} (MPa) à un déplacement de la traverse de $x=3\text{mm}$, simulation avec la géométrie 3.

D'après la simulation, la couche ex- β plastifie pour ce cas d'étude à un déplacement de la traverse de 0,4mm, au niveau des pôles internes.

Des simulations ont été réalisées pour chacun des autres cas d'étude avec les mêmes conditions d'endommagement de l'anneau que celles présentées pour l'exemple, et suivant la même démarche. Les simulations du scénario de rupture sont présentées en Figure 75 pour le cas des gaines oxydées 1349s à 1100°C (10% ECR), et en Figure 76 pour le cas des gaines oxydées 520s à 1200°C (10% ECR).

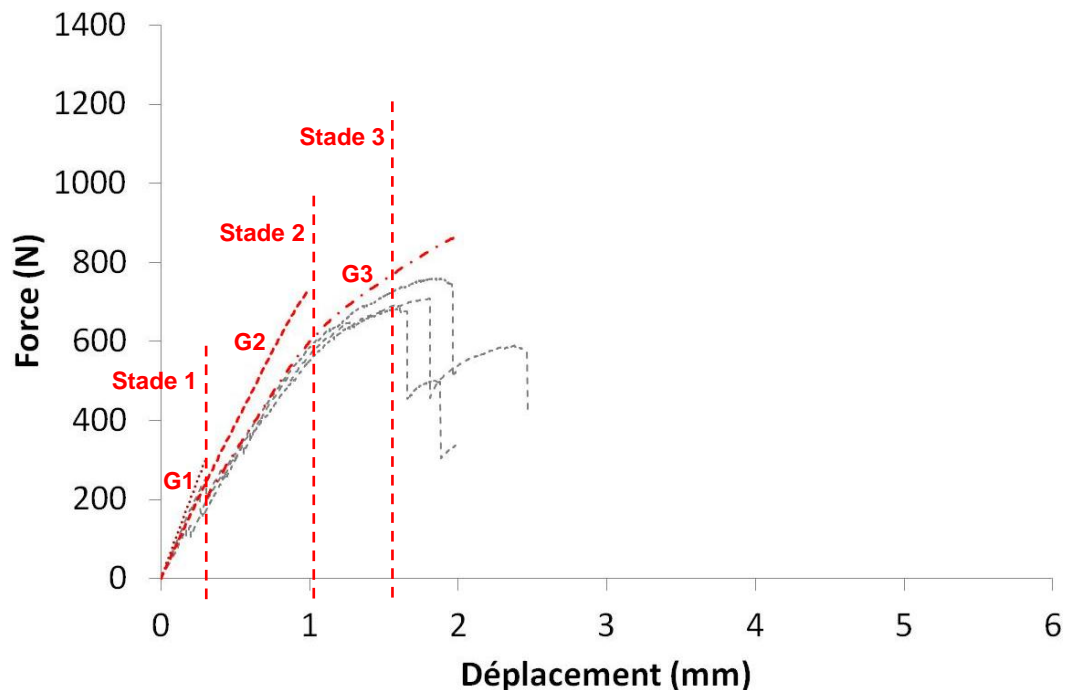


Figure 75 : Simulation du scénario de rupture des gaines oxydées 1349s à 1100°C (10% ECR), sollicitées par RCT, selon les 3 stades d'endommagement de la gaine.

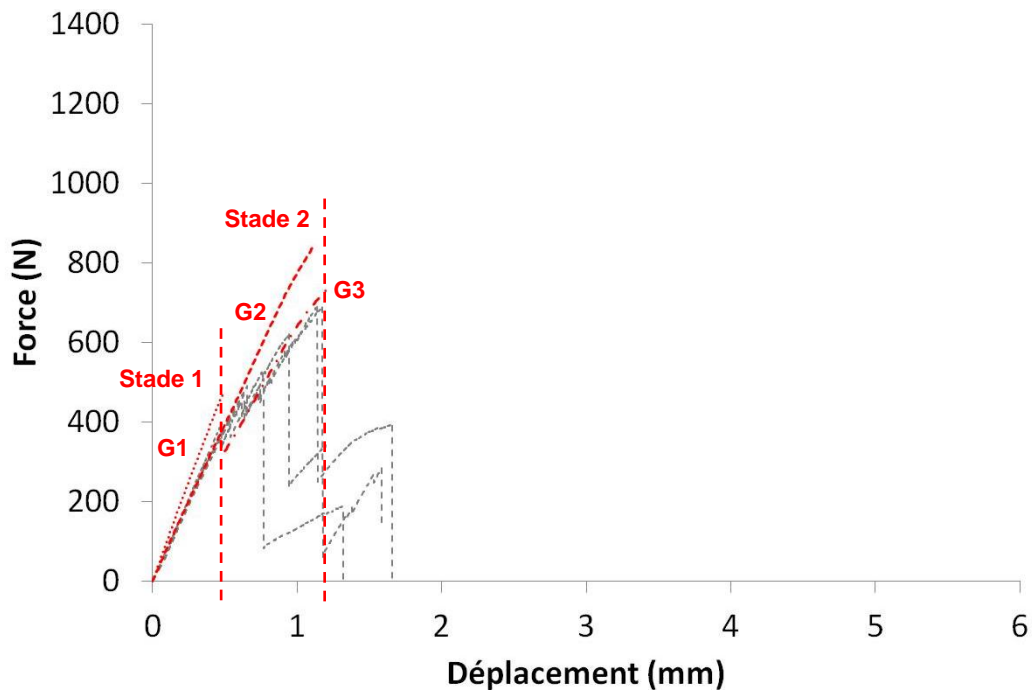


Figure 76 : Simulation du scénario de rupture des gaines oxydées 520s à 1200°C (10% ECR), sollicitées par RCT, selon les 3 stades d'endommagement de la gaine.¹⁰

D'une façon générale, la modélisation séquentielle de l'endommagement de l'anneau nous a permis de valider le scénario de rupture proposé, et de confirmer les observations expérimentales.

4.5. Critère de rupture préliminaire pour la gaine oxydée et trempée en conditions APRP

La ductilité globale de la gaine stratifiée est pilotée par la ductilité de la phase ex- β , comme nous l'avons vu au paragraphe 3.3. La résistance globale de la gaine peut alors être estimée à partir de la déformation à rupture de la couche ex- β si la teneur moyenne d'oxygène dans cette couche est connue.

La Figure 77 illustre le champ de déformation plastique circonférentielle cumulée calculé pour chaque cas d'étude sur gaine monocouche ex- β pour le déplacement de la traverse correspondant au moment de la rupture expérimentale :

¹⁰ La teneur en oxygène moyenne de la couche ex- β se trouve en dehors du domaine de validité de la loi de comportement plastique de la couche ex- β proposée par JESSON (2011), si bien que les courbes simulées ont été obtenues par extrapolation.

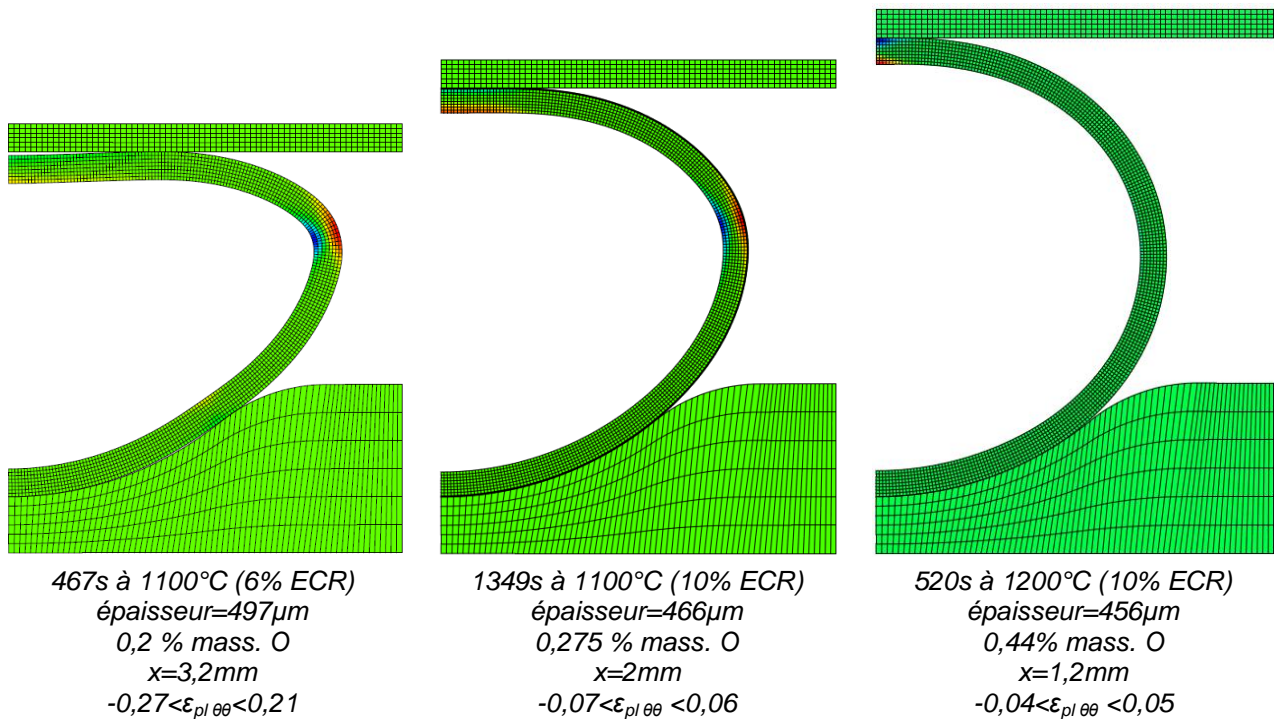


Figure 77 : Champ de déformation plastique circonférentielle cumulée calculé pour chaque cas d'étude au déplacement correspondant au moment de la rupture. La zone verte n'est pas déformée, la bleu est en contraction ($\epsilon < 0$) et la rouge en extension ($\epsilon > 0$).

Pour les gaines oxydées 467s à 1100°C (6% ECR), et 1349s à 1100°C (10% ECR) et sablées, la déformation totale circonférentielle maximale calculée est observée sur la face externe, au niveau de l'équateur, à l'endroit où la rupture a lieu expérimentalement pour les gaines sablées comme pour les non sablées. En ce qui concerne le cas d'une gaine oxydée 520s à 1200°C (10% ECR) et sablée, la déformation totale circonférentielle maximale calculée est observée sur la face interne, au niveau du pôle supérieur. Or, nous avons vu précédemment que les gaines oxydées dans ces conditions et testées par RCT présentent une dispersion de la charge à rupture, et que les éprouvettes présentent des fractures à des endroits différents dans le repère de l'anneau positionné lors du test. Le gradient d'oxygène de la couche ex-β présent dans ces gaines, dont la teneur moyenne en oxygène se trouve aux alentours de la limite de transition ductile/fragile à température ambiante (BRACHET et al., 2008), explique le fait que l'échantillon fragilisé localement par l'oxydation puisse présenter une rupture ailleurs qu'au pôle supérieur.

Pour définir ce critère préliminaire de rupture, nous avons tracé l'évolution de la déformation totale à rupture de la phase ex-β en fonction de la teneur en oxygène, de deux façons différentes :

- A partir de la striction à rupture des éprouvettes de traction de l'étude de STERN (2007) (utilisées aussi par JESSON (2011)) : on peut obtenir la déformation plastique à rupture si on suppose des hypothèses de chargement uniaxial, d'incompressibilité et d'isotropie, puis on doit additionner la déformation élastique pour obtenir la déformation totale. La teneur en oxygène prise en compte correspond à la teneur nominale des plaquettes homogénéisées.
- A partir des déformations totales déduites des simulations des essais de compression d'anneaux réalisés sur gaines monocouche ex-β avec la loi de comportement plastique proposée par JESSON (2011) : pour un déplacement de la traverse correspondant, d'après les courbes de force déplacement expérimentales, au moment de la rupture (ou de l'amorçage de la fissuration pour le cas ductile), la déformation totale circonférentielle maximale est simulée. La teneur en oxygène correspond à la teneur moyenne de la couche ex-β de la gaine, obtenue à la microsonde par MA et al. (2008).

La Figure 78 présente l'évolution de la déformation totale obtenue par les deux méthodes en fonction de la teneur en oxygène :

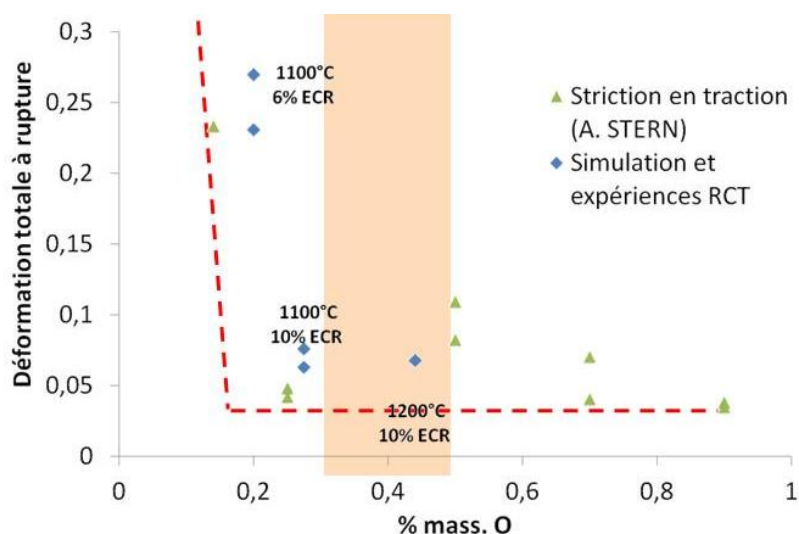


Figure 78 : Evolution de la déformation totale à rupture avec la teneur en oxygène, évaluée à partir de la striction des éprouvettes de traction de l'étude de STERN (2007), et à partir de la corrélation entre les simulations des essais de compression d'anneaux sur gaines sablées et les observations expérimentales de l'amorçage des fissures. Les conditions d'oxydation sont indiquées pour les gaines.

L'évolution établie à partir de la corrélation entre les simulations des essais de compression d'anneaux sur gaines sablées et les observations expérimentales de l'amorçage des fissures reste une estimation limitée par l'exactitude de la détermination du moment de l'amorçage des fissures dans la couche ex- β à partir des images filmées. Néanmoins, l'accord entre les déformations totales à rupture obtenues sur des plaquettes sollicitées en traction et des anneaux testés par RCT est acceptable.

4.6. Simulation préliminaire d'un RCT sur gaine oxydée et hydrurée

Jusqu'ici nous n'avons abordé que la gaine oxydée et trempée en conditions APRP, sans prendre en compte l'éventuelle prise d'hydrogène de la gaine en service (en conditions nominales de fonctionnement du réacteur). Afin d'évaluer la capacité de la loi de comportement proposée par JESSON (2011) pour décrire le comportement de la phase ex- β chargée en hydrogène et de tester les limites de notre démarche pour établir le scénario de rupture, et du calcul par éléments finis correspondant, nous avons voulu réaliser une simulation préliminaire en prenant en compte l'effet de l'hydrogène. Dans le cadre d'un travail précédent au CEA, des gaines en Zy-4 pré-hydrurées ont été préparées dans les mêmes conditions d'oxydation que nos cas d'étude, puis elles ont été testées par RCT (VANDENBERGHE, 2009). Nous avons alors repris deux de ces cas, et nous avons essayé de reconstruire le scénario de rupture proposé en réalisant la même démarche que nous avons décrite dans le paragraphe précédent.

Pour simuler ces courbes, nous avons gardé les mêmes paramètres, maillages et hypothèses que celles utilisées pour simuler les cas non hydrurés. En particulier, nous avons considéré que lors de l'oxydation, tout l'hydrogène de la gaine (pris pendant la pré-hydruration) se concentre dans la couche ex- β (BRACHET et al., 2008). Nous avons utilisé la loi de comportement proposée par JESSON (2011) pour caractériser le comportement plastique de cette couche, car elle intègre la teneur en hydrogène comme paramètre, en plus de la teneur en oxygène. En ce qui concerne le comportement élastique de la couche ex- β oxydée et hydrurée, nous avons supposé qu'elle se comporte de la même façon que la couche ex- β sans hydrogène.

Trois cas ont été simulés. Le premier cas concerne des gaines hydrurées à une teneur nominale de 80ppm H, puis oxydées 467s à 1100°C (6% ECR) et trempées. A cause de la migration de

l'hydrogène vers la couche ex- β durant l'oxydation, nous considérerons, compte-tenu des épaisseurs des couches, que sa concentration est de 97 ppm H dans la couche ex- β . Le scénario résultant est présenté en Figure 79 pour ce cas en particulier :

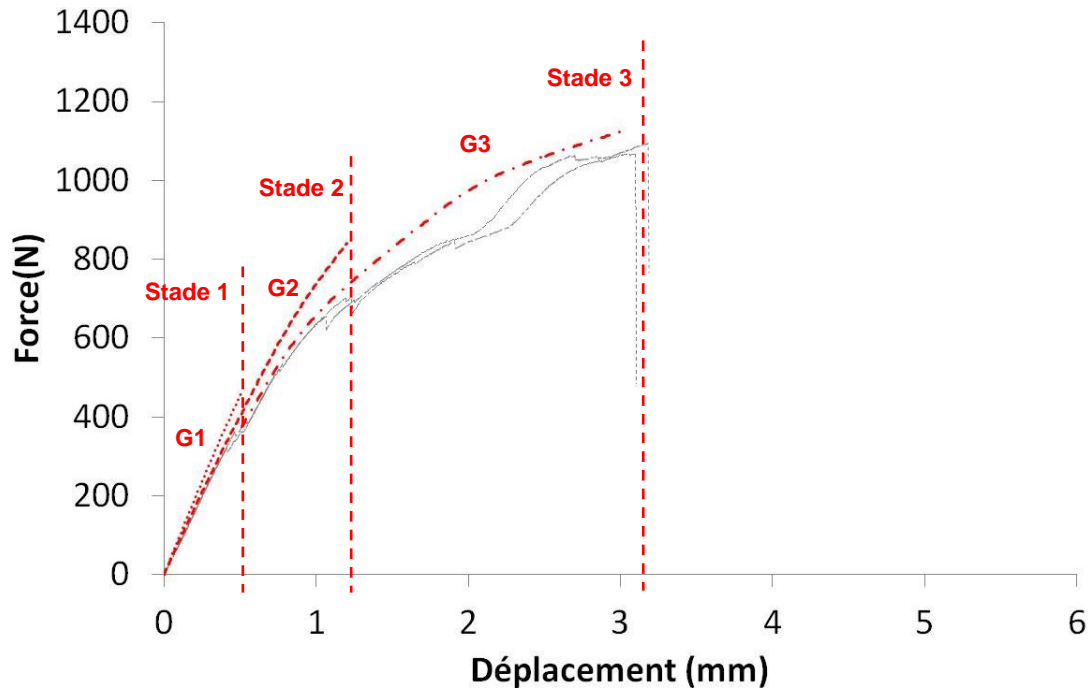


Figure 79 : Simulation du scénario de rupture des gaines hydrurées (97 ppm H dans la couche ex- β) et oxydées 467s à 1100°C (6% ECR), sollicitées par RCT, selon les 3 stades d'endommagement de la gaine.

Le deuxième cas concerne des gaines hydrurées à une teneur nominale de 80ppm H, puis oxydées 1349s à 1100°C (10% ECR). Suite à l'oxydation, nous considérerons que sa concentration est de 110ppm H dans la couche ex- β . Le scénario résultant est présenté en Figure 80 pour ce cas :

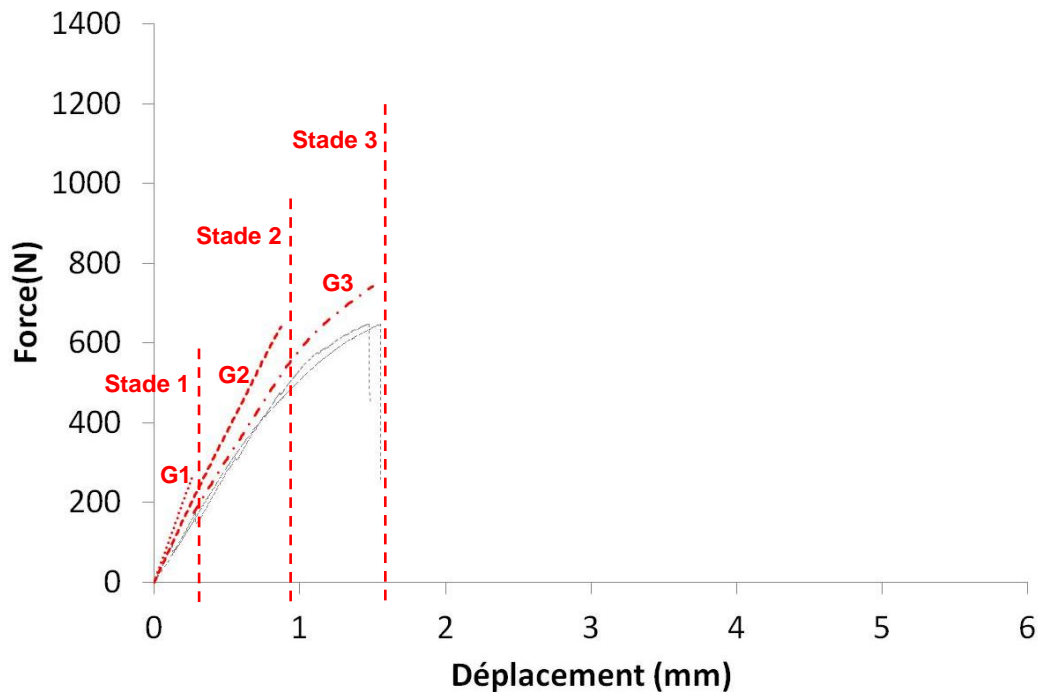


Figure 80 : Simulation du scénario de rupture des gaines hydrurées (110 ppm H dans la couche ex- β) et oxydées 1349s à 1100°C (10% ECR), sollicitées par RCT, selon les 3 stades d'endommagement de la gaine.

Le troisième cas concerne des gaines hydrurées à une teneur nominale de 150ppm H, puis oxydées 520s à 1200°C (10% ECR). Suite à l'oxydation, nous considérerons que sa concentration est de 204ppm H dans la couche ex-β. Le scénario résultant est présenté en Figure 81 pour ce cas :

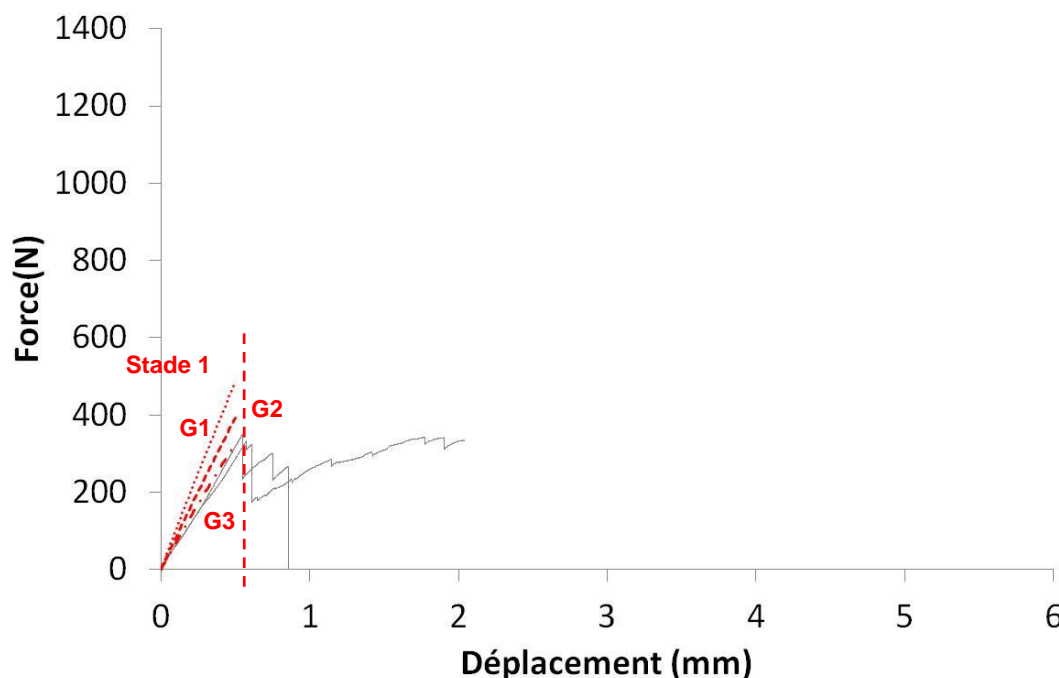


Figure 81 : Simulation du scénario de rupture des gaines hydrurées (204 ppm H dans la couche ex-β) et oxydées 520s à 1200°C (10% ECR), sollicitées par RCT, selon les 3 stades d'endommagement de la gaine.¹¹

Contrairement à ce qu'on observe en absence d'hydrogène, le scénario d'endommagement considéré conduit à une légère surestimation, pour un déplacement de la traverse donné, de la charge des courbes de force déplacement obtenues par RCT sur gaines oxydées et hydrurées.

Bien que faible, l'écart observé (de l'ordre de 15%) entre les données expérimentales et les simulations est présent sur les zones élastique et plastique de la courbe de force déplacement. Pour trouver la source de cet écart, des expertises métallographiques des échantillons issus des essais seraient nécessaires afin de confirmer les épaisseurs des couches, par exemple. Nous pourrions aussi tenter d'expliquer l'écart par la non prise en compte de l'effet de l'hydrogène dans la définition du comportement élastique de la couche ex-β, par une différence d'état initial de contraintes de la gaine non pris en compte, ou encore par le fait que la simulation est réalisée avec des lois de comportement plastiques obtenues sur plaquettes et non pas sur des gaines (la différence de textures, entre autres, pourrait accentuer une différence de comportement en présence de l'hydrogène). Or, seule l'élaboration des éprouvettes homogènes, sous forme de gaine, chargées en hydrogène et en oxygène pourraient constituer un repère pour répondre à cette dernière question, qui sera abordée dans les perspectives de cette étude.

Ces résultats préliminaires, très encourageants compte tenu des nombreuses hypothèses, montrent que la simulation de notre scénario de rupture pourrait être transposée aux gaines oxydées et hydrurées en conditions APRP.

¹¹ La teneur en oxygène moyenne de la couche ex-β se trouve en dehors du domaine de validité de la loi de comportement plastique de la couche ex-β proposée par JESSON (2011), si bien que les courbes simulées ont été obtenues par extrapolation

4.7. Conclusion : Scénario de rupture de la gaine

L'objectif de ce chapitre était de proposer un scénario de rupture de la gaine oxydée et trempée en conditions APRP sollicitée par RCT. Nous sommes partis du fait que le scénario pouvait être représenté à partir de « stades » caractéristiques de l'endommagement de la gaine, et que ces stades pouvaient être décrits sur la base des acquis expérimentaux. Nous avons développé un modèle par éléments finis de l'essai de compression d'anneaux sur gaine qui peut rendre compte d'une manière simplifiée de l'endommagement de la gaine à partir d'hypothèses représentatives des observations expérimentales. En particulier, les choix de modélisation ont été présentés dans ce chapitre.

Les simulations de nos cas d'étude nous ont permis de vérifier la simulation correcte du scénario de rupture des gaines sollicitées par RCT. Le scénario proposé considère que la couche $\alpha(O)$ est pré-endommagée avant le RCT, lors de la trempe, et que cet endommagement contribue à la relaxation de contraintes du matériau stratifié. Il s'agit en fait de fissures radiales qui se refermeraient dans les zones en compression et s'ouvriraient dans les zones en traction pendant la sollicitation par RCT. L'endommagement de la gaine se produirait en trois stades au cours de l'essai : l'écaillage de la zircone aux pôles d'abord, la fissuration de la zircone à l'équateur ensuite, et finalement la rupture de la couche $ex-\beta$.

La ductilité globale de la gaine stratifiée étant pilotée par la ductilité de la phase $ex-\beta$, nous avons défini un critère de rupture pour la gaine oxydée et trempée en conditions APRP à partir de l'évolution de la déformation plastique à rupture en fonction de la teneur en oxygène de cette couche. Pour cela, nous avons pris en compte la striction des éprouvettes de traction de l'étude de STERN (2007) (utilisées aussi par JESSON (2011)), et les simulations des essais de compression d'anneaux sur gaines sablées réalisées avec la loi de comportement plastique proposée par JESSON (2011). L'accord observé entre les déformations plastiques à rupture obtenues sur des plaquettes sollicitées en traction et des anneaux testés par RCT est acceptable.

Finalement, des résultats encourageants ont été obtenus par des simulations préliminaires basées sur le même scénario de rupture pour des gaines oxydées et hydrurées sollicitées par RCT.

Conclusion générale et perspectives

Conclusion

Le comportement des assemblages combustibles des Réacteurs à Eau Pressurisée (REP) doit être évalué en conditions de fonctionnement normales ainsi qu'en conditions accidentelles. Pendant la 2ème phase du scénario dit « d'Accident de Perte de Réfrigérant Primaire (APRP) », les tubes de gainage des crayons combustibles en alliage de zirconium subissent une oxydation à haute température (jusqu'à 1200°C), à partir de la face externe de la gaine, puis une trempe à l'eau lors du renoyage final du cœur du réacteur.

La gaine comporte ainsi schématiquement trois couches après oxydation et trempe : une première couche extérieure de zircone très riche en oxygène (ZrO_2) fragile à basse température, une deuxième couche de phase α stabilisée par l'oxygène ($\alpha(\text{O})$) elle aussi fragile, et une troisième couche interne de phase dite « ex- β » qui est la seule à pouvoir garder une certaine ductilité à basse température. Cependant, en cas de prise d'hydrogène due à la corrosion en service et/ou pendant le transitoire, l'hydrogène a tendance à se concentrer dans cette couche interne en induisant une fragilisation supplémentaire.

Afin de caractériser le comportement résiduel de la gaine à l'issue d'un transitoire APRP, les Essais de Compression d'Anneaux (Ring Compression Tests- RCT en anglais) sont souvent utilisés pour évaluer les propriétés mécaniques « post trempe » de la gaine. L'objectif de l'étude ici présentée est de proposer un scénario de rupture des différentes couches de la gaine en Zy-4 oxydée et trempée en conditions APRP, au cours d'un essai de compression d'anneaux à température ambiante.

Dans le cadre de ce travail, des tronçons de gaine en Zy-4 ont été oxydés en conditions APRP (simple face), et trempés à l'eau à température ambiante. Des gaines stratifiées comportant une couche externe de zircone, une couche intermédiaire de phase $\alpha(\text{O})$ et une couche interne de phase ex- β ont été obtenues. Nous avons constaté que la gaine est constituée de trois couches avec des propriétés mécaniques particulières :

- La couche ex- β peut avoir un comportement ductile ou fragile, selon sa teneur en oxygène. En dessous de 0,4% mass. O, elle a un comportement élasto-plastique avec écrouissage, à température ambiante. Cette couche présente une texture très marquée due à la sélection des variants pendant la transformation α - β - α , mais son comportement mécanique peut être considéré comme globalement isotrope.
- La couche d' $\alpha(\text{O})$, fragile, présente un gradient d'oxygène dans son épaisseur, qui est à l'origine d'un gradient de certaines propriétés mécaniques, dont le module d'Young. Cette couche présente une texture très marquée vraisemblablement due à l'état de contraintes qui se développe à l'interface métal oxyde (plutôt qu'à la sélection des variants). Elle est endommagée suite à l'oxydation et la trempe, si bien qu'elle présente de nombreuses fissures radiales.
- La couche de zircone formée à haute température par l'oxydation du zirconium présente un comportement élastique-fragile dont les propriétés restent aujourd'hui mal connues. Néanmoins, malgré sa structure colonnaire et un liseré d'étain pour des taux d'oxydation

suffisamment élevés, son comportement mécanique serait proche de celui d'une couche homogène (il est du moins considéré comme tel dans la présente étude).

- L'état de contraintes de la gaine suite à la trempe n'est pas nul. La couche $\alpha(O)$ serait en traction, et la couche de zircone se trouverait en compression. La fissuration de la couche $\alpha(O)$ en traction contribuerait à la relaxation de contraintes de la zircone en compression, raison pour laquelle cette couche reste adhérente suite à la trempe.

Des essais de compression d'anneaux complets, et d'autres interrompus à différents stades, réalisés sur ces gaines ont été filmés. Ces expériences, ainsi que les fractographies post-essais interrompus nous ont permis de mieux comprendre le déroulement de l'essai. Nous avons montré que :

- Les petites chutes de force en début d'essai, qui ont pour effet de changer légèrement la pente de la courbe de force-déplacement, correspondent à l'écaillage de la zircone au contact avec les supports, d'abord au pôle supérieur, puis au pôle inférieur.
- L'endommagement de la zircone au niveau de l'équateur a été mis en évidence en début de la zone plastique de la courbe de force-déplacement.
- La première chute significative de force sur la courbe de force déplacement correspond à la présence d'au moins une fissure traversante pour les trois cas d'étude fragiles (ECR supérieur ou égal à 10%).
- L'amorçage et la propagation stable de la fissuration dans la couche ex- β n'a lieu que pour des éprouvettes peu oxydées (ECR=6%).

Des essais de compression d'anneaux réalisés sur des gaines oxydées et trempées dans différentes conditions, auxquelles nous avons enlevé les deux couches fragiles externes par sablage, ont aussi été réalisés. Nous avons observé que :

- Lorsqu'on enlève les couches de zircone et d' $\alpha(O)$, la rigidité de l'anneau oxydé et trempé en conditions APRP est réduite.
- Les couches fragiles ne jouent pas un rôle significatif sur l'amorçage macroscopique et la propagation des fissures dans la couche ex- β .
- Le comportement plastique de la gaine stratifiée est piloté principalement par la couche ex- β .

Ensuite nous avons proposé un scénario de rupture de la gaine oxydée et trempée en conditions APRP sollicitée par RCT. Nous sommes partis du fait que le scénario pouvait être représenté à partir de « stades » caractéristiques de l'endommagement de la gaine, et que ces stades pouvaient être décrits sur la base des acquis expérimentaux. Nous avons développé un modèle par éléments finis de l'essai de compression d'anneaux sur gaine qui rend compte d'une manière simplifiée du comportement de la gaine à partir d'hypothèses représentatives des observations expérimentales de son endommagement.

Les simulations par éléments finis de nos cas d'étude nous ont permis de vérifier la simulation correcte du scénario de rupture des gaines sollicitées par RCT. Le scénario proposé établit que :

- La couche $\alpha(O)$ est pré-endommagée avant même le début de l'essai du fait de la trempe. L'endommagement, qui contribue à la relaxation de contraintes du matériau stratifié, consiste en fissures radiales qui se refermeraient dans les zones en compression et s'ouvriraient dans les zones en traction pendant la sollicitation par RCT.
- L'endommagement de la gaine se produirait selon trois stades au cours de l'essai : l'écaillage de la zircone aux pôles d'abord, la fissuration de la zircone à l'équateur ensuite, et finalement la rupture de la couche ex- β .

- La ductilité globale de la gaine stratifiée étant pilotée par la ductilité de la phase ex- β , un critère de rupture pour la gaine oxydée et trempée en conditions APRP a été défini à partir de l'évolution de la déformation plastique à rupture en fonction de la teneur en oxygène de la couche ex- β . L'accord observé entre les déformations plastiques à rupture obtenues sur des plaquettes sollicitées en traction et des anneaux testés par RCT est acceptable.

Finalement, des résultats encourageants compte tenu des nombreuses hypothèses, ont été obtenus par des simulations préliminaires reposant sur le même scénario pour des gaines oxydées et hydrurées sollicitées par RCT.

Perspectives

Avec cette étude, nous avons proposé un scénario de rupture des différentes couches de la gaine en Zy-4 oxydée et trempée en conditions APRP, au cours d'un essai de compression d'anneaux. Le scénario proposé permet de mieux comprendre le comportement mécanique global de la gaine, ainsi que les phénomènes d'endommagement qui interviennent lors de la sollicitation par RCT.

Néanmoins, certains aspects qui concernent des hypothèses dans notre raisonnement, ou des paramètres qui ont été ajustés, auraient besoin d'être approfondis. Pour améliorer la compréhension du RCT, il faudrait d'abord compléter la caractérisation de la gaine stratifiée :

- Il faudrait développer des expériences adaptées à la caractérisation du comportement élastique et thermique de la couche de zircone. Cette couche reste très difficile à tester à des épaisseurs typiques ($\sim 100\mu\text{m}$) avec des méthodes traditionnelles, et sa structure évolue fortement lorsqu'on essaye d'obtenir des couches plus épaisses.
- En ce qui concerne l'endommagement, des expériences de tomographie sur quelques échantillons avant RCT et issus des RCT interrompus, seraient nécessaires afin d'étudier l'état d'endommagement de la gaine, et de la couche $\alpha(\text{O})$ en particulier avant l'essai, et l'avancement des fissures au cours de l'essai.
- Nous avons estimé le sens et l'ordre de grandeur global des contraintes internes de la gaine stratifiée, mais une meilleure évaluation de l'état initial de contraintes de la gaine est nécessaire pour cerner sa réponse mécanique réelle. Il faudrait donc transposer les expériences de diffraction de neutrons (déjà réalisées sur une plaquette) à la gaine pour mieux estimer d'une part les contraintes sur cette géométrie, et d'autre part pour mettre en évidence les différences de texture éventuelles.

Afin d'étudier la réponse mécanique des gaines oxydées en conditions APRP en fin du cycle du combustible, il serait intéressant d'approfondir la compréhension du RCT sur gaine hydrurée (qui a fait l'objet d'une étude préliminaire dans ce travail). Pour cela, il serait nécessaire d'élaborer des éprouvettes homogènes, sous forme de gaine, chargées en hydrogène et en oxygène. Les lois de comportement qu'on pourrait obtenir à partir de ces éprouvettes, constitueraient un élément capable de vérifier si la différence de textures pourrait accentuer une différence de comportement en présence d'hydrogène, ce qui nous permettrait d'expliquer l'écart observé entre les expériences et les simulations préliminaires.

Enfin, il serait judicieux de :

- Vérifier si le scénario d'endommagement de la gaine proposé dans ce travail, peut être transposé à d'autres types d'essai tels que la flexion 3 points.
- Etudier la tenue à la trempe proprement dite de la gaine.

Bibliographie

ABRIATA J.P., GARCES J., &VERSACI R. (1986) "The O-Zr (OXYGEN –Zirconium) System". *Journal of phase equilibria*, vol 116-124, pp 1265-1270.

ALMAGESTE P. (2006) « Schéma de principe animé d'un réacteur nucléaire à eau pressurisée ». http://fr.wikipedia.org/wiki/Centrale_nucl%C3%A9aire Publié le 25 août 2006.

BALDINOZZI G., SIMEONE D., GOSSET D., & DUTHEIL M. (2003) "Neutron Diffraction Study of the Size-Induced Tetragonal to Monoclinic Phase Transition in Zirconia Nanocrystals". *Physical Review Letters*, vol 90, pp 216103.

BECHADE J.L. (2010) "Metallurgy and properties of Zr alloys for nuclear applications". *International School of Nuclear Engineering. INSTN*.

BECHADE J.L. (1995) « Texture et écrouissage de tôles en Zy-4 : évolutions en fonction des paramètres de laminage à froid ; influence sur le comportement élastique, la dilatation thermique et l'anisotropie plastique ». *Thèse de doctorat de l'école doctorale sciences pour l'ingénieur de Nantes*.

BIGERELLE M., MAZERAN P.E. & RACHIK M. (2007) "The first indenter-sample contact and the indentation size effect in nano-hardness measurement". *Materials Science and Engineering. C* 27 pp 1448–1451.

BILLONE, M., YAN, Y., BURTSEVA, T. & DAUM, R. (2008) "Cladding Embrittlement During Postulated Loss-of-Coolant Accidents". *NUREG/CR-6967*.

BOISSOT P. & BERANGER G. (1969) « Variation des paramètres cristallins de la solution solide zirconium-oxygène en fonction de la teneur en oxygène ». *C.R. ACAD, Sc. Paris, t. 269, Série C*, pp. 587-590.

BRACHET J.C., PELCHAT J., HAMON D., MAURY R., JACQUES P. & MARDON J.P. (2001) « Mechanical behavior at Room Temperature and Metallurgical study of Low-Tin Zy-4 and M5™ (Zr-NbO) alloys after oxidation at 1100°C and quenching". *Proceeding of TCM on "Fuel behavior under transient and LOCA conditions", Sept. 10-14, 2001, IAEA, Halden, Norway*.

BRACHET J.C. & GUILBERT T. (2003) *Données internes CEA.*

BRACHET J.C., HAMON D., URVOY S. & BOUGAULT A., (2007) *Données internes CEA.*

BRACHET J.C., VANDENBERGHE-MAILLOT V., PORTIER L., GILBON D., LESBROS A., WAECKEL N., & MARDON J.-P. (2008) "Hydrogen Content, Preoxidation, and Cooling Scenario Effects on Post-Quench Microstructure and Mechanical Properties of Zircaloy-4 and M5® Alloys in LOCA Conditions". *Journal of ASTM International*, Vol. 5, No. 5

BRACHET J.C., BÉCHADE J.L., CASTAING A., LE BLANC L. & JOUEN T. (1998) "Relationship between Crystallographic Texture and Dilatometric Behaviour of a Hexagonal Polycrystalline Material". *Materials Science Forum*, vol 273 – 275, pp 529-534.

BUNNEL L.R., BATES J.L. & MELLINGER G.B. (1983) "Some high-temperature properties of Zy-O alloys". *Journal of Nuclear Materials*. Vol 116. P 219-232.

BUNNEL L.R., MELLINGER G.B. & BATES J.L. (1977) "High-temperature properties of Zy-O alloys". *EPRI NP-524. RESEARCH PROJECT 251-1*

BURGERS W.G. (1934) "The process of transition of the cubic-body-centered modification into the hexagonal-close-packed modification of zirconium". *Physica I*, pp. 561-586.

BUSSER V. (2009) « Mécanismes d'endommagement de la couche d'oxyde des gaines de crayons de combustible en situation accidentelle de type RIA », *Thèse de Doctorat de l'institut de Sciences Appliquées de Lyon.*

BUSSER V., BAIETTO-DUBOURG M.C., DESQUINES J., DURIEZ C. & MARDON J.P. (2009) "Mechanical response of oxidized Zircaloy-4 cladding material submitted to a ring compression test". *Journal of Nuclear Materials*, vol. 384. pp 87-95.

CABRERA A., VANDENBERGHE V., BESSON J., LE SAUX M., MARDON J.P. & HAFIDI B. (2010) "Finite Element Modeling of Ring Compression Tests on Post-quenched Single Side Oxidized Zirconium-based Alloys (LOCA Conditions)" *Proceedings of Topfuel 2010.*

CHARQUET D. « Traitements thermiques du zirconium et du hafnium ». *Techniques de l'ingénieur*, M1 345, M 560.

CHAUUVY C. (2004) « Traitements thermomécaniques dans le haut domaine α du Zircaloy-4 trempé β ». *Thèse ENSMSE.*

CHUNG H.M. & KASSNER T.F. (1979) « Pseudo-binary zircaloy-oxygen phase diagram », *Journal of Nuclear Materials*, vol. 84, pp.327-339.

CHUNG D.H. & BUESSEM W.R. (1967) "The elastic anisotropy of crystals". *Journal of applied physics*, vol. 38 pp 2010-2012.

COUTERNE JC. & CIZERON G. (1969) « Comportement dilatométrique de monocristaux de zirconium α et application à la mesure des coefficients moyens d'expansion thermique suivant les axes principaux ». *Journal of Nuclear Materials* 32, pp. 310-321.

CREPIN J. (1995) « Etude des mécanismes de déformation et d'endommagement du zirconium grade 702 traité β . Applications aux cordons de soudure » *Thèse de l'École Polytechnique*.

DAO M., CHOLLACOP N., VAN VLIET K.J., VENKATESH T.A. & SURESH S. (2001) "Computational modeling of forward and reverse problems in instrumented Sharp indentation". *Acta Materialia* 49 ,pp 3899-3918

DAUM R., MAJUMDAR S., & BILLONE M. (2009) "Experimental and Analytical Investigation of the Mechanical Behavior of High-Burnup Zircaloy-4 Fuel Cladding". *Zirconium in the Nuclear Industry: 15th International Symposium*. pp 119-140.

FISHER E.S. & RENKEN C.J. (1964) "Single-Crystal Elastic Moduli and the hcp \rightarrow bcc Transformation in Ti, Zr, and Hf". *Physical Review*, vol 135.

FRECHINET S. (2001) « Transformations et comportements du Zircaloy-4 en conditions anisothermes » *Thèse de Doctorat, Ecole des Mines de Paris*.

GARDE A. & MITCHELL D. (2011) "Effects of LOCA Transient Time-Temperature History on the Extent of Clad Embrittlement due to Oxygen and Hydrogen" *Proceedings of Topfuel 2011*.

HACHE G. & CHUNG H.M. (2001) "The history of LOCA embrittlement criteria"

HOLT R.A. (1970) "The beta to α phase transformation in Zircaloy-4". *Journal of Nuclear Materials*, 35, 322-324.

HONG H. S., KIM S. J. & LEE K. S. (1999) "Effect of oxygen content on the beta-quenched microstructure of modified Zircaloy-4" *Journal of Nuclear Materials*, vol 265, pp 108-111.

INPL- LYON (2009) "Études menées sur la gaine du combustible"
<http://www.ipnl.in2p3.fr/cfi/lagaine.htm> Citation du 26 octobre 2009.

JESSON M. (2011) « Etude des gaines du combustible nucléaire en alliages en zirconium chargés en hydrogène et en oxygène simulant les microstructures résultant d'un transitoire accidentel de type APRP ». *Rapport de stage CNAM*.

KISI E.H. & HOWARD C.J. (1998) "Crystal Structures of Zirconia Phases and their Inter-Relation" *Key Engineering Materials*, vol 153-154 pp1-36.

LE SAUX M. (2009) *Données internes CEA.*

LEISTIKOW S., SCHANZ G., BERG H.V. & ALY, A.E (1983). "Comprehensive presentation of extended Zircaloy-4 steam oxidation results (600-1600°C)". In: *OECD-NEA-CSNI/IAEA Specialists Meeting on Water Reactor Fuel Safety and Fission Product Release in Off-Normal and Accident Conditions*, Risø National Laboratory, Denmark.

MA X., TOFFOLON-MASCLET C., GUILBERT T., HAMON D. & BRACHET J.C. (2008) "Oxidation kinetics and oxygen diffusion in low-tin Zircaloy-4 up to 1523 K". *Journal of Nuclear Materials*, vol 377, pp 359–369.

MAILLOT V. & BRACHET J.C. (2007) *Données internes CEA.*

MARTIN-RENGEL M.A., GOMEZ F.J., RUIZ-HERVIAS J., CABALLERO L. & VALIENTE A. (2009) "Obtention of fracture properties of unirradiated hydrogen-charged fuel cladding from ring compression tests". *Proceedings of Topfuel 2009*, pp 544-551.

MASSIH A.R., ANDERSSON T., WITT P., DAHLBÄCK M. & LIMBÄCK M. (2003) "Effect of quenching rate on the beta to α phase transformation structure in zirconium alloys". *Journal of Nuclear Materials*, vol 322, pp 138-151.

MECHLIN C.F. (1951) *Trans AIME*, vol. 191 pp 994.

PARISE M. (1996) « Mécanismes de corrosion des alliages de zirconium. Étude des cinétiques initiales d'oxydation et du comportement mécanique du système métal-oxyde », *Thèse de Doctorat de l'Ecole des Mines de Paris.*

PORTIER L., BREDEL T., BRACHET J.C., MAILLOT V., MARDON J.P., & LESBROS A. (2005) "Influence of Long Service Exposures on the Thermal-Mechanical Behavior of Zy-4 and M5™ Alloys in LOCA Conditions". *Journal of ASTM International*, vol 2, No. 2.

RASHID K. & AL-RUB ABU (2007) "Prediction of micro and nanoindentation size effect from conical or pyramidal indentation". *Mechanics of Materials*, vol 39, pp 787-802.

RYSHKEWITCH E. (1960) "Oxide Ceramics". *Elsevier Science & Technology*, 472 p.

SCHANZ, G., LEISTIKOW, S. (1981) "ZrO₂-Scale Degradation during Zircaloy-4 High Temperature Steam Exposure; Microstructural Mechanisms and Consequences for PWR Safety Analysis". In: *ANS/ENS Topical Meeting on Reactor Safety Aspects of Fuel Behaviour*, Sun Valley, USA.

SIEFKEN L.J., CORYELL E.W., HARVEGO E. A. & HOHORST J.K. (2001) "SCDAP/RELAP5/MOD 3.3 Code Manual MATPRO - A Library of Materials Properties for Light-Water-Reactor Accident Analysis". *NUREG/CR-6150*.

SIMEONE D., BALDINOZZI G., GOSSET D., DUTHEIL M., BULOUE A. & HANSEN T. (2003) "Monoclinic to tetragonal semireconstructive phase transition of zirconia". *Physical review B*, vol 67, pp 064111.

SONNENBURG H.G., HERB J., SIEVERS J. & BACHMANN H.P. (2009) "Determination of Mechanical Cladding Properties by Best-Fit Simulations of Ring Compression Tests". *Proceedings of Topfuel 2009*. pp 535-543.

STERN A. (2007) "Comportements Métallurgique et Mécanique des Matériaux de Gainage du Combustible REP Oxydés à Haute Température". *Thèse de Doctorat de l'Ecole des Mines de Paris*.

WOO O.T. & TANGRI K. (1979) "Transformation characteristics of rapidly heated and quenched zircaloy-4-oxygen alloys". *Journal of nuclear materials*, vol. 79, pp. 82.

VANDENBERGHE V. (2011) « Séminaire MINOS ». 12-13 Septembre, Saclay-Neurospin.

VANDENBERGHE V. (2009) *Données internes CEA*.

YEGOROVA L., LIOUTOV K., JOURAVKOVA N., KNOBEEV A., SMIRNOV V., CHESANOV V. & GORYACHEV A. (2005) "Experimental Study of Embrittlement of Zr-1%Nb VVER Cladding under LOCA-Relevant Conditions". *NUREG/IA-0211*.

YEUGO FOGAING E., LORGOUILLOUX Y., HUGER M. & GAULT C.P. (2006) "Young's modulus of zirconia at high temperature". *Journal of materials science*, vol. 41, pp. 7663-7666.

Annexes

Annexe 1	Nanoindentation instrumentée	113
1.1.	Principe de détermination du module d'Young par nanoindentation	113
1.2.	Profils de module d'Young obtenus par nanoindentation instrumentée	114
Annexe 2	Diffraction de neutrons.....	117
2.1.	Expérience de détermination de la texture de la couche ex- β	117
2.1.1.	Echantillons	117
2.1.2.	Conditions d'acquisition	117
2.1.3.	Résultats	117
2.2.	Expérience d'estimation de la contrainte résiduelle de la couche $\alpha(O)$	118
2.2.1.	Echantillon	118
2.2.2.	Expérience de diffraction de neutrons	119
2.2.3.	Principe de détermination des contraintes en diffraction	122
Annexe 3	Comportement mécanique de la phase ex-β chargée en oxygène et en hydrogène	125
3.1.	Protocole d'élaboration des matériaux types	125
3.2.	Contrôle de la teneur en hydrogène et en oxygène	127
3.3.	Sollicitation des éprouvettes par essai de traction	129
3.4.	Fractographies.....	132
3.4.1.	Echantillons rompu à $T < 20^{\circ}\text{C}$ (teneur nominale en oxygène et 150 ppm d'hydrogène) (planche 1) .	132
3.4.2.	Echantillon rompu à 135°C (teneur nominale en oxygène) (planche 1).....	132
3.4.3.	Echantillon à 0,25%mass. O rompu à 25°C (planche 2)	132
3.4.4.	Echantillon à 0,25%mass. O testés à 135°C (planche 2)	132
3.5.	Loi de comportement plastique	135
Annexe 4	Diffraction RX	137
4.1.	Analyses.....	137
4.2.	Résultats.....	137
4.3.	Discussion.....	138
Annexe 5	Calcul de contraintes thermiques	141
5.1.	Calcul analytique pour une géométrie plaque	141
5.2.	Calcul analytique pour une géométrie tube.....	143
5.3.	Propriétés des matériaux prises en compte pour le calcul	147
5.3.1.	Dilatation thermique	147

5.3.2.	Module d'Young et coefficient de Poisson	148
5.4.	Calcul analytique et par éléments finis	149
5.5.	Prise en compte d'une relaxation des contraintes à haute température	149
5.6.	Résultats des simulations	149
Annexe 6	Essais de compression d'anneaux	153
6.1.	Gaine en Zy-4 oxydée 50s à 1000°C (traitée β)	154
6.2.	Gaine en Zy-4 oxydée 467s à 1100°C (6,5% ECR)	154
6.3.	Gaine en Zy-4 oxydée 467s à 1100°C (6,3% ECR)	155
6.4.	Gaine en Zy-4 oxydée 1349s à 1100°C (10,3% ECR)	155
6.5.	Gaine en Zy-4 oxydée 520s à 1200°C (10,3% ECR)	156
6.6.	Gaine en Zy-4 oxydée 1492s à 1200°C (16,5% ECR)	156
Annexe 7	Simulation EF des RCT	157
7.1.	Etude de sensibilité aux paramètres de calcul	157
7.1.1.	Sensibilité au maillage	157
7.1.2.	Sensibilité au module d'Young des couches fragiles	159
7.1.3.	Sensibilité aux angles de transition de la dépendance angulaire de la couche $\alpha(O)$	160
7.2.	Simulations des RCT sur gaines sablées	161
7.3.	Limites du modèle	163
7.3.1.	Simulation d'un RCT sur gaine « traitée β » et sablée	163
7.3.2.	Simulation d'un RCT sur gaine oxydée à 17% ECR	164
Annexe 8	Fractographies post-RCT sur gaines en Zy-4 oxydé	167
8.1.	Gaines en Zy-4 oxydées 467s à 1100°C (6% ECR)	167
8.2.	Gaines en Zy-4 oxydées 1349s à 1100°C (10% ECR)	169
8.3.	Gaines en Zy-4 oxydées 520s à 1200°C (10% ECR)	171
8.4.	Gaines en Zy-4 oxydées 1492s à 1200°C (17% ECR)	173

Annexe 1 Nanoindentation instrumentée

1.1. Principe de détermination du module d'Young par nanoindentation¹²

Pour évaluer le module d'Young à partir d'une indentation nous avons utilisé un cycle de trois charges et décharges (pilotage en force), réalisés avec une pointe de type Berkovich. Le calcul du module d'Young a été fait à partir du troisième segment de déchargement. La Figure 82 présente un exemple de courbe de force-profondeur d'indentation (déplacement). La pente du troisième segment de déchargement y est signalée en rouge.

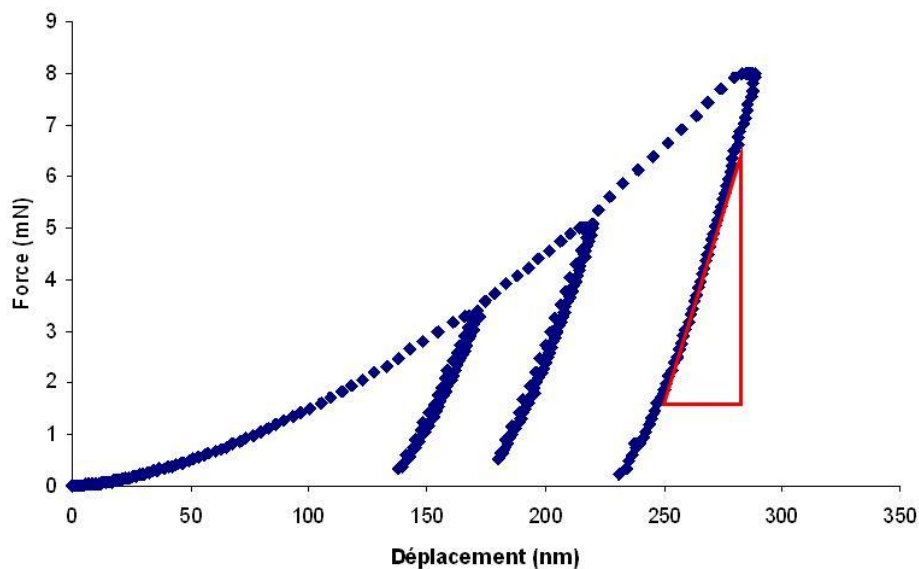


Figure 82 : Exemple de courbe de force déplacement pour une indentation réalisée en 3 cycles de charge par nanoindentation instrumentée.

Le premier point du segment donne les valeurs de force F_{\max} et déplacement d_{\max} maximaux utilisés pour l'évaluation de la dureté. Pour le module d'Young, on ajuste une loi puissance sur 90% de la courbe de déchargement avant d'en déduire la pente S au point initial.

A partir de S , on détermine la profondeur de contact d_c en début de chargement par :

$$d_c = d_{\max} - \varepsilon \frac{F_{\max}}{S}$$

où $\varepsilon = 0,75$ pour un indenteur Berkovich.

L'aire de contact est donnée par : $A = f(d_c)$

où la fonction f , est la fonction de forme de la pointe selon :

$$f(x) = 24,5x^2 + \sum_{i=1}^8 C_i x^{1/2^{i-1}}$$

¹² Extrait de la documentation interne CEA/SRMA.

avec les coefficients déterminés par calibration présentés dans le tableau suivant :

i	0	1	2	3	4	5	6	7	8
C _i	24,5	838	0,154	1,64	1,08	2,91	0,0044	3,36	0,0046
$x^{1/2^{(i-1)}}$	x^2	x	$x^{1/2}$	$x^{1/4}$	$x^{1/8}$	$x^{1/16}$	$x^{1/32}$	$x^{1/64}$	$x^{1/128}$

Tableau 8 : Coefficients de la fonction de forme de la pointe utilisée au SRMA

Le module d'Young réduit E_r se déduit alors de l'équation suivante :

$$E_r = \frac{1}{\beta} \frac{\sqrt{\pi}}{2} \frac{S}{\sqrt{A}}$$

où $\beta = 1,034$ pour une pointe Berkovich.

Le module d'Young réduit, caractéristique de la déformation élastique du couple indenteur – échantillon, assimilés à deux ressorts en série, permet enfin de déterminer le module d'Young E de l'échantillon :

$$\frac{1}{E_r} = \frac{(1 - \nu^2)}{E} + \frac{(1 - \nu_i^2)}{E_i}$$

où le module d'Young de l'indenteur en diamant vaut $E_i = 1141$ GPa, son coefficient de Poisson $\nu_i = 0,07$, et où le coefficient de Poisson de l'échantillon ν doit être connu à partir d'autres méthodes.

La dureté est déterminée par :

$$H = \frac{F_{\max}}{A}$$

Au CEA/SRMA, ces calculs sont réalisés automatiquement par l'ordinateur du dispositif de nanoindentation instrumentée.

1.2. Profils de module d'Young obtenus par nanoindentation instrumentée

Nous présentons ci-dessous des profils préliminaires réalisés au CEA/SRMA, dans le cadre de cette étude, sur des gaines oxydées à différentes températures, et à différents taux d'oxydation. Un cycle de charge avec des paliers de force de 3 mN, 5 mN et 8 mN a été utilisé, dans un nanoindenteur de modèle Nano Indenteur XP de l'entreprise Nano Instruments Inc. La valeur du coefficient de poisson de l'échantillon prise en compte pour le calcul du module d'Young est de 0,3.

Pour les raisons évoquées au paragraphe 2.4.2.1, concernant l'effet de taille, les modules d'Young sont probablement surestimés du fait des faibles niveaux de charges appliqués, d'autant plus que la concentration en oxygène est élevée (et donc que le matériau est dur).

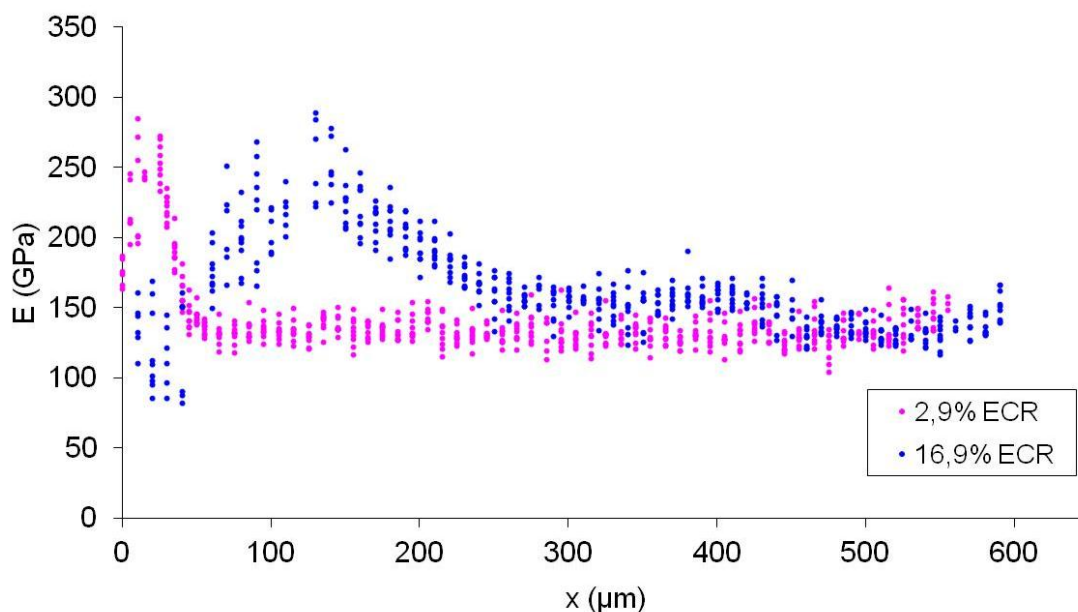


Figure 83 : Profils de module d'Young obtenus par nanoindentation instrumentée des gaines en Zy-4 oxydées à 1100°C à différents taux d'oxydation.

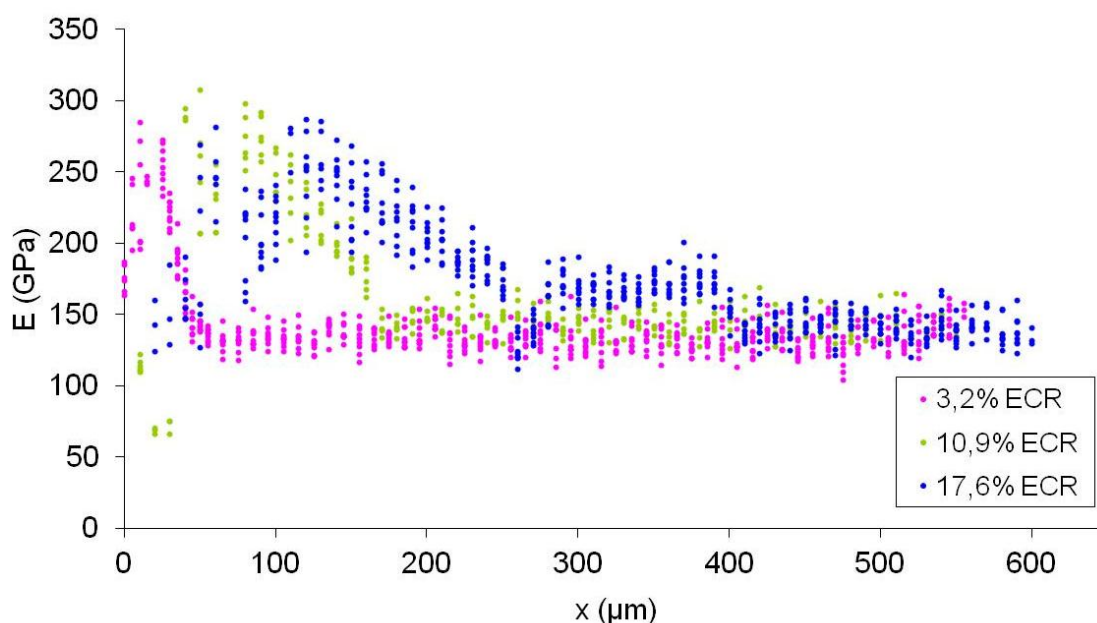


Figure 84 : Profils de module d'Young obtenus par nanoindentation instrumentée des gaines en Zy-4 oxydées à 1200°C à différents taux d'oxydation.

Deux de ces cas ont été doublés avec des expériences menées par S. POISSONET au CEA/SRMP, à une profondeur constante d'indentation de 500nm (un seul cycle). La valeur du coefficient de Poisson prise en compte pour le calcul du module d'Young est de 0,35. La Figure 85 et la Figure 86 illustrent ces deux cas :

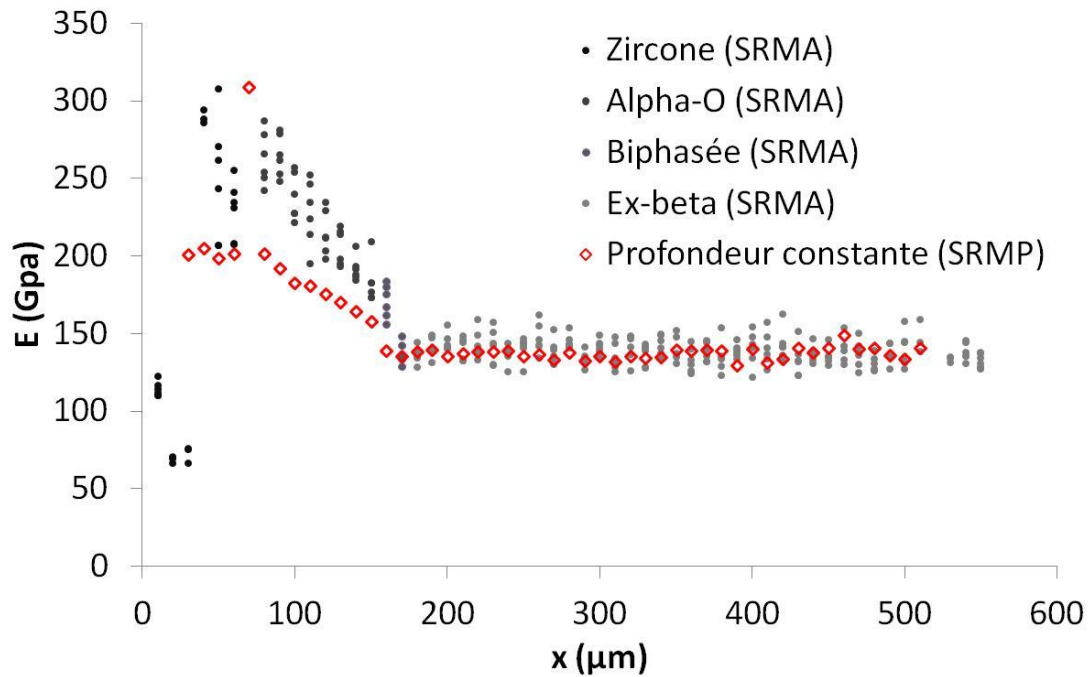


Figure 85 : Profils de module d'Young obtenus par nanoindentation instrumentée sur une gaine oxydée 1349s à 1100°C (ECR=10%).

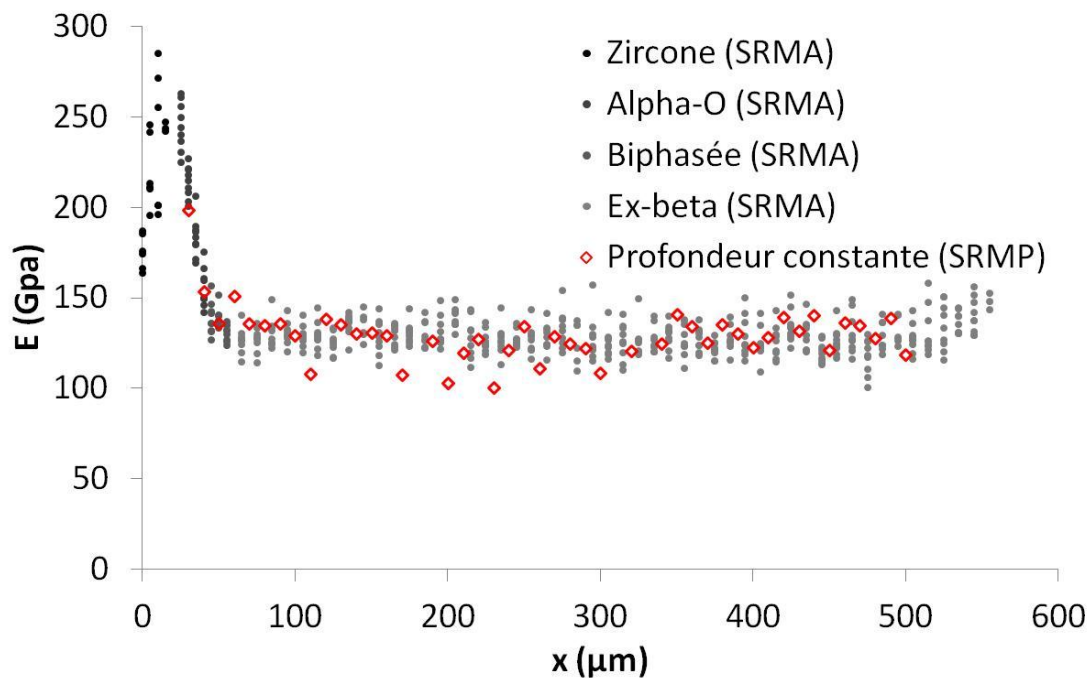


Figure 86 : Profils de module d'Young obtenus par nanoindentation instrumentée sur une gaine oxydée 117s à 1100°C (ECR=3%).

Concernant le module d'Young des couches fragiles ($\alpha(\text{O})$ et zircone), les indentations réalisées à profondeur constante indiquent des valeurs plus proches de la littérature que les indentations réalisées avec trois cycles de charge. Néanmoins, quelle que soit la technique utilisée, les modules d'Young sont surestimés systématiquement.

Annexe 2 Diffraction de neutrons

2.1. Expérience de détermination de la texture de la couche ex- β

2.1.1. Echantillons

Une expérience de diffraction de neutrons a été réalisée pour évaluer la texture de la couche ex- β . Cette expérience a été menée sur deux échantillons sous forme de tronçons de gaine de 10mm :

- Gaine oxydée 467s à 1100°C (6% ECR) et sablée par la suite afin d'enlever les couches externes d' α (O) et zircon. Teneur moyenne de 0,2 % mass. O.
- Gaine oxydée 1349s à 1100°C (10% ECR) sans sablage. Teneur moyenne de 0,275% mass. O

L'obtention et la caractérisation de ces échantillons est présentée au paragraphe 2.4.

2.1.2. Conditions d'acquisition

Expérience réalisée sur le spectromètre 6T1 (4 cercles) du Laboratoire Léon Brillouin (LLB-Orphée) CEA-Saclay/CNRS, dédié aux analyses de textures :

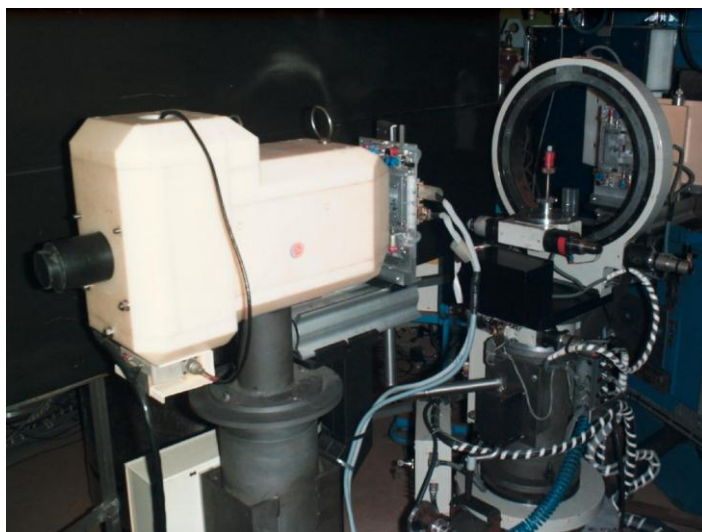


Figure 87 : spectromètre 6T1 du Laboratoire Léon Brillouin (LLB-Orphée) CEA-Saclay/CNRS.

Longueur d'onde des neutrons : 0.1159 nm (monochromateur Cu (111)).

Analyses de textures avec 5 figures de pôles expérimentales : (10.0), (00.2), (10.1), (10.2) et (11.0), pas de mesures en K χ i (inclinaison) et Φ i (rotation) respectivement : 5° et 3.75°.

2.1.3. Résultats

Les figures de pôles obtenues pour les couches ex- β des échantillons ayant subi les deux préparations sont les mêmes :

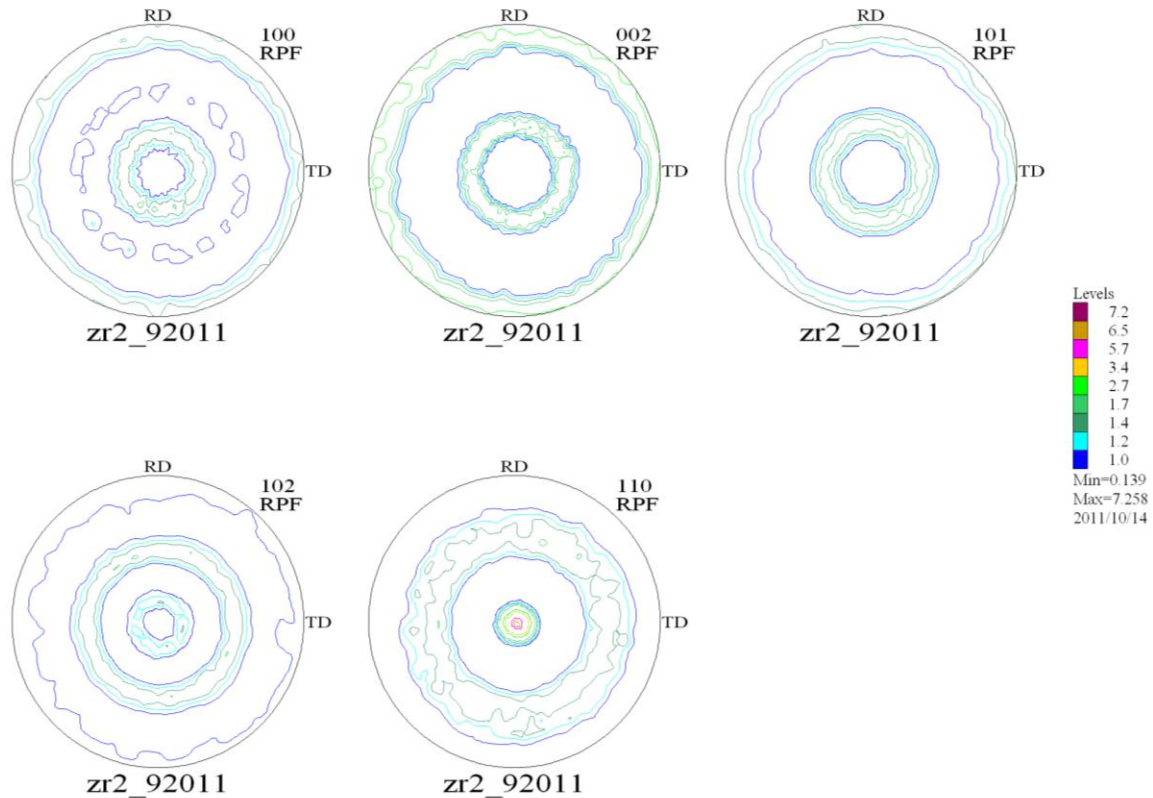


Figure 88 : Figures de pôles obtenues par diffraction de neutrons sur la couche ex- β de deux gaines oxydées en conditions APRP (la direction axiale de la gaine correspond au centre de la figure de pôles).

On observe que :

- La couche ex- β présente une texture de fibre.
- Les normales au plan (11.0) sont orientées très fortement suivant l'axe de la gaine.
- Les plans (00.2) sont en périphérie de la figures de pôles, et à environ 30° de la direction normale au plan de l'échantillon.
- Les facteurs de Kearns ont une valeur proche de 1/3

2.2. Expérience d'estimation de la contrainte résiduelle de la couche $\alpha(O)$ ¹³

2.2.1. Echantillon

L'échantillon analysé se présente sous la forme d'une plaque épaisse en Zy-4 recristallisé (Sn : 1.5%, Fe : 0.2%, Cr : 0.1% et O : 0,08% en poids) qui a été fortement oxydée dans le dispositif DEZIROX 1 à 1250°C (3520s puis trempe à l'air). Au bilan, la couche intermédiaire $\alpha(O)$ présente une épaisseur de $308\mu\text{m}$. Un schéma représentatif de l'échantillon analysé, comprenant une coupe métallographique, est donné dans la Figure 89 (sur cette figure il s'agit d'un échantillon un peu moins oxydé que celui analysé lors de l'expérience au LLB).

¹³ Données internes CEA (BECHADE, 2011)

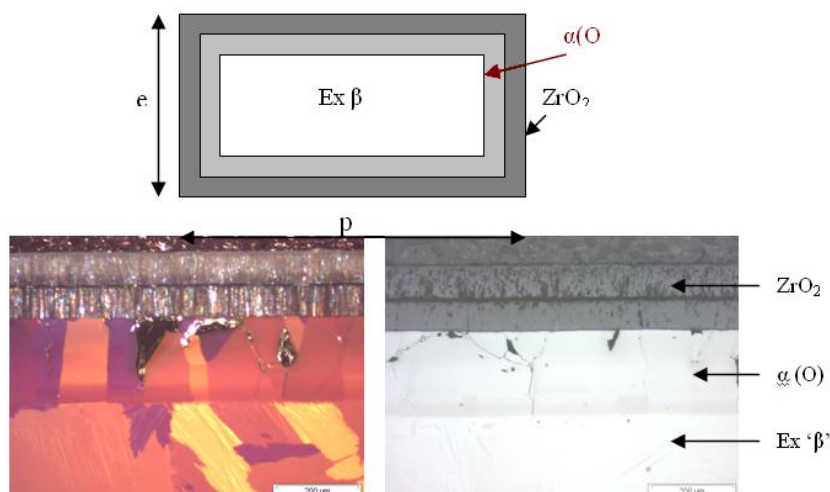


Figure 89 : Schéma représentatif de l'échantillon analysé (illustration d'un échantillon un peu moins oxydé que celui analysé lors de l'expérience au LLB).

2.2.2. Expérience de diffraction de neutrons

La Figure 90 présente un schéma des repères utilisés pour l'analyse en diffraction de neutrons sur la plaquette étudiée :

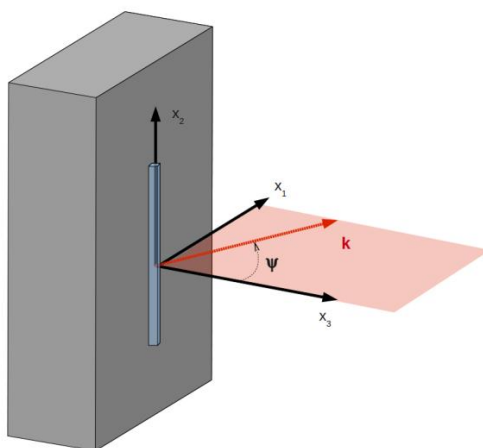


Figure 90 : Repères utilisés pour l'analyse en diffraction de neutrons sur la plaquette étudiée.

Dans un premier temps, les différents diffractogrammes relatifs à chacune des couches ont dû être déterminés : zircone monoclinique (ZrO_2), une deuxième couche de phase α stabilisée par l'oxygène ($\alpha(\text{O})$ ou Zr-O), hexagonale compacte, et une troisième couche interne de phase dite « ex- β », également hexagonale compacte. Le diffractogramme ainsi calculé en considérant ces trois phases et pour la longueur d'onde de 0,286 nm disponible sur le diffractomètre G5.2 du LLB-ORPHEE est reproduit sur la Figure 91 :

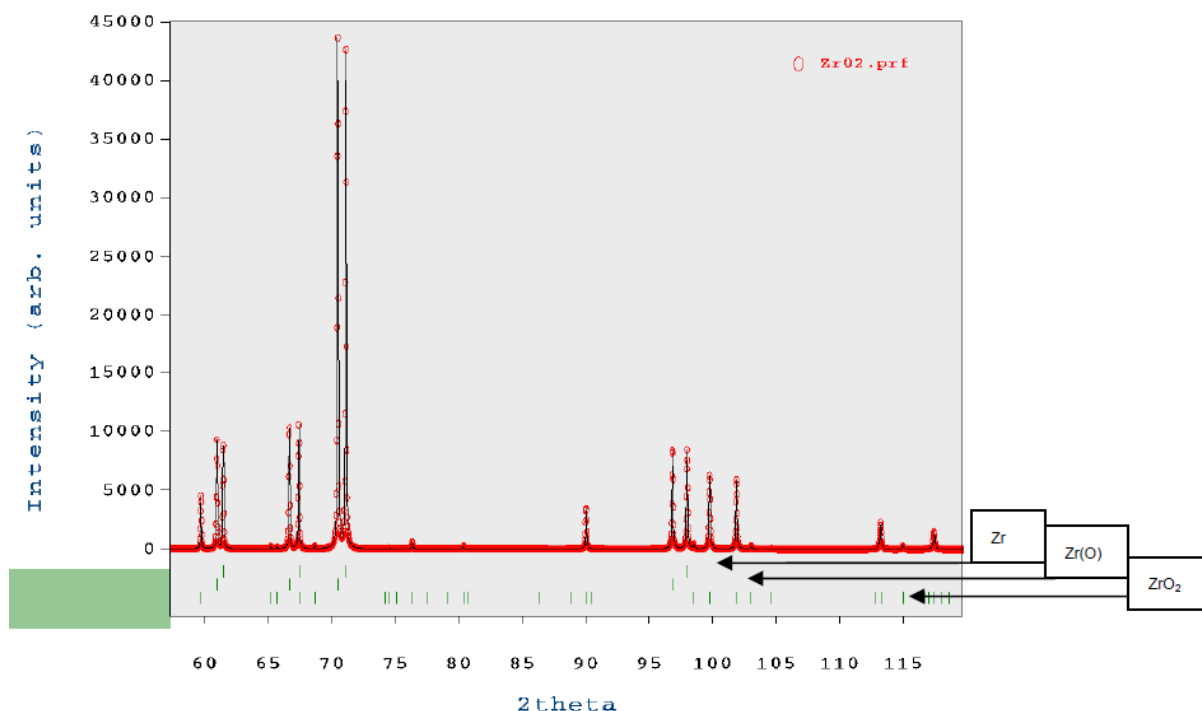


Figure 91 : Diffractogramme calculé en considérant les phases ex- β , α (O) et zircon, pour la longueur d'onde de 0,286 nm disponible sur le diffractomètre G5.2 du LLB-ORPHEE.

Sur la Figure 92 on peut suivre les variations de l'intensité totale reçue par le détecteur en fonction de l'angle Ψ . Cette intensité totale comprend le bruit de fond et les pics de diffraction de la couche ex- β et de la couche α (O) (Zr(O)) éventuellement. Le volume de jauge était grossièrement de $2 \times 40 \times 20 \text{ mm}^3$, et la divergence était très importante. L'information obtenue est donc une information moyenne sur quasiment toute l'épaisseur de l'échantillon. Ceci nous a permis de juger qualitativement des effets de texture (fortes variations d'intensités diffractées en fonction de Ψ).

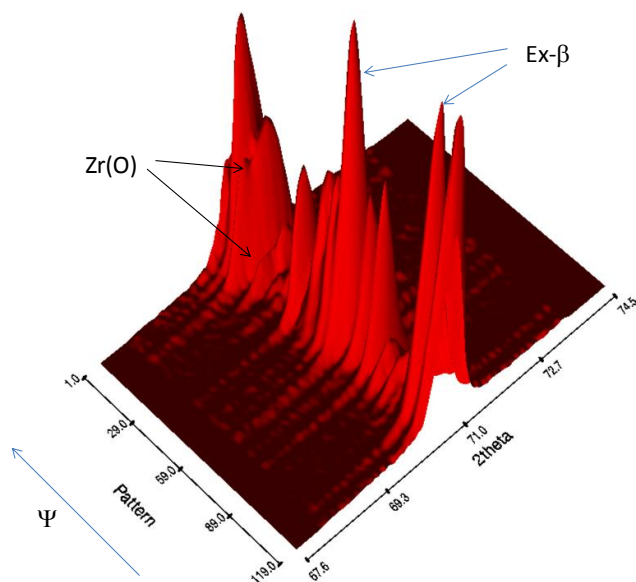


Figure 92 : Vue 3D d'un scan où chaque pattern correspond au profil d'intensité enregistré par le détecteur pour une valeur de Ψ donnée.

Le challenge principal de ces premières analyses était de parvenir à localiser la mesure dans la couche intermédiaire α (O) (Zr(O)), d'épaisseur $\sim 300 \text{ }\mu\text{m}$, avec un volume de jauge assez important (de l'ordre du mm^3 en diffraction des neutrons). Nous avons donc suivi les variations de

l'intensité totale reçue par le détecteur en fonction de la position du volume de jauge dans l'épaisseur (parallèle à X3), et ce jusqu'à isoler les pics d'intensité de la couche $\alpha(O)$ uniquement.

La Figure 93 illustre un scan en profondeur du plan (10.1) de la couche $\alpha(O)$, où l'ex- β est quasi invisible à cause d'un effet de texture.

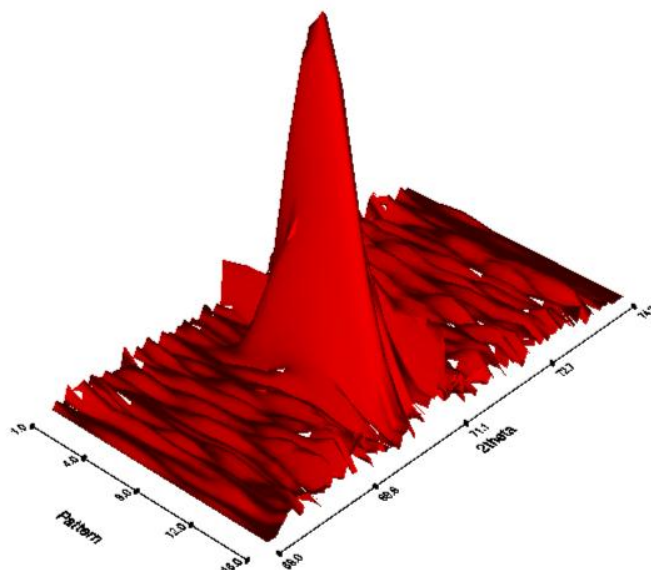


Figure 93 : Vue en 3D d'un scan en profondeur pour $\Psi = -101^\circ$ (absence de l'ex- β , plan (10.1) de la couche Zr(O) en position de diffraction).

Dans un second temps, la position suivant X3 étant fixée, nous avons recherché différents angles Ψ permettant d'avoir une intensité diffractée suffisante dans la couche $\alpha(O)$, afin de pouvoir évaluer l'état de contraintes, via une approche en $\sin^2\Psi$. On s'est positionné par la suite au maximum d'intensité diffractée lors du scan en profondeur pour réaliser des diffractogrammes suivant 4 angles Ψ . On a bien observé le pic le plus intense de l' $\alpha(O)$, mais également parfois l'apparition aux grands angles du pied d'un pic relatif au plan {10.1} de la couche ex- β , le volume de jauge « léchant » la couche correspondante. Il a donc été nécessaire de déconvoluer cette contribution pour accéder à l'estimation des déformations internes dans $\alpha(O)$. La Figure 94 présente le diffractogramme relatif à la couche $\alpha(O)$, plan (10.1), pour les 4 angles Ψ choisis :

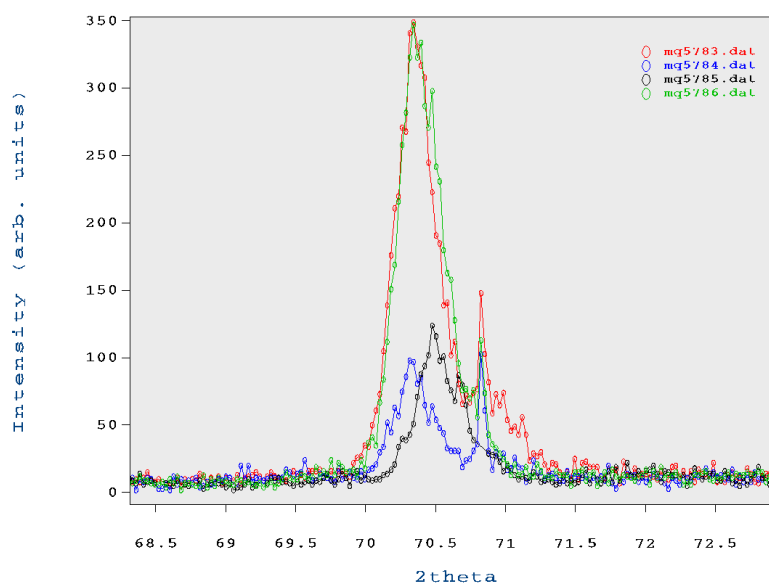


Figure 94 : Diffractogramme relatif à la couche Zr(O), plan (10.1), pour les 4 angles Ψ choisis.

A ce niveau d'analyse, il est déjà possible d'affirmer qualitativement, vu le déplacement de la raie relative au plan (10.1) en fonction de Ψ , que nous sommes en présence d'un état de contrainte en tension.

Une première estimation des contraintes internes dans la couche $\alpha(\text{O})$ a été effectuée à partir de ces 4 diffractogrammes en considérant pour le calcul des déformations un échantillon de référence (contraintes nulles) à 4% massique en oxygène broyé (issu des travaux de thèse de STERN(2007)).

Le calcul en $\sin^2\Psi$, est extrêmement délicat dans ces conditions et peut être critiquable car nous sommes en présence d'une texture cristallographique très marquée associée à des grains grossiers (il n'y a très certainement qu'un seul grain dans l'épaisseur de la couche d' $\alpha(\text{O})$, i.e. la microstructure de cette dernière est quasi-2D). Néanmoins, pour cette première approche, il permet de donner une première estimation qualitative du sens de la contrainte et de son amplitude. Pour chaque angle Ψ considéré, les grains mesurés sont différents et relativement peu nombreux, avec des réponses mécaniques différentes. On est donc très loin de l'hypothèse d'isotropie du comportement élastique normalement faite pour ce type d'analyse. Néanmoins pour une première estimation nous avons prudemment choisi d'extrapoler la déformation à $\sin^2\Psi=1$, ceci nous permettant d'estimer la déformation $\varepsilon_{11} = 0,0009$. En considérant grossièrement un état de contrainte plane, avec $\varepsilon_{22} = \varepsilon_{11}$ et $\sigma_{33} = 0$, un module d'Young de 71 GPa et un coefficient de Poisson de 0,37 (valeurs obtenues à partir d'un calcul autocohérent avec une microstructure isotrope), cette déformation correspondrait à une contrainte résiduelle σ_{11} de l'ordre de 100 MPa en traction.

Des raffinements expérimentaux et en calculs sont prévus par la suite dans le cadre d'une collaboration entre le SRMA (JL. BECHADE) et le LLB-ORPHEE (V. KLOSEK). Un nouveau proposal a été déposé.

2.2.3. Principe de détermination des contraintes en diffraction

Le décalage de la raie de diffraction est utilisé comme jauge de déformation, d'où le besoin d'avoir un échantillon de référence à l'état de contraintes nul : recuit, broyé, poudre...

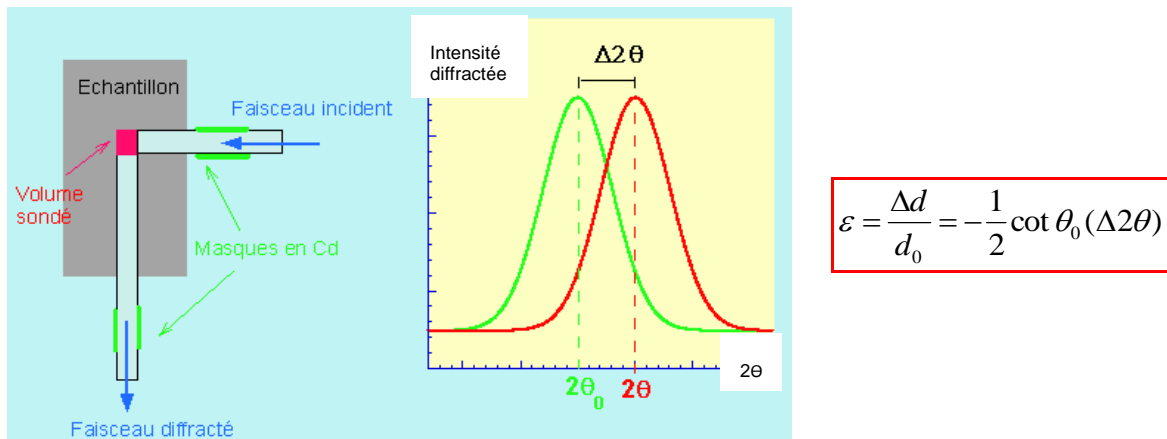


Figure 95 : Schéma du principe de détermination des contraintes en diffraction.

La déformation est reliée via les lois de la mécanique des milieux continus à la contrainte

$$\varepsilon_{ij} = S_{ijkl} \sigma_{kl}$$

Pour présenter le principe général de l'analyse, nous nous placerons dans le cas particulier, où la contrainte normale à la surface est nulle et les deux autres contraintes principales σ_I et σ_{II} sont contenues dans le plan tangent à cette surface. Considérons par la suite le schéma suivant :

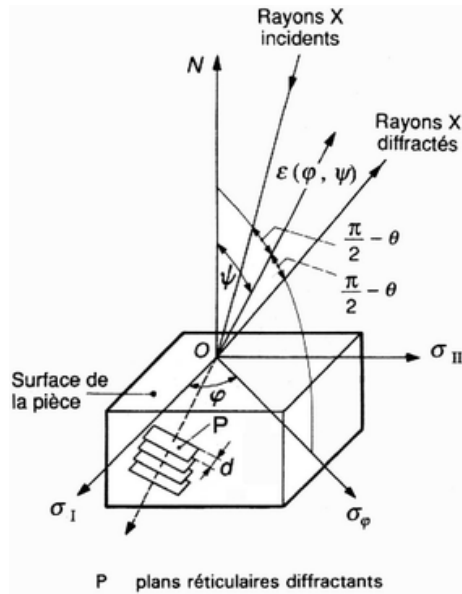


Figure 96 : Principe de la méthode de détermination des contraintes internes (schéma pour des rayons X, mais applicable également aux neutrons).

Avec les hypothèses de la mécanique des milieux continus (liant les déformations aux contraintes principales : $\epsilon = 1/E [\sigma_I - \nu(\sigma_{II} + \sigma_{III})]$) on trouve que, dans ce même plan tangent, la contrainte σ_φ , dans la direction faisant l'angle φ avec l'axe $O\sigma_I$, a pour valeur :

$$\sigma_\varphi = \sigma_{II} \cos^2 \varphi + \sigma_{III} \sin^2 \varphi$$

et que, dans le plan (NO, σ_φ) , la déformation $\epsilon(\varphi, \Psi)$ suivant l'axe $O\epsilon(\varphi, \Psi)$, faisant l'angle Ψ avec la normale ON au plan tangent, est donnée par :

$$\epsilon(\varphi, \Psi) = \frac{1+\nu}{E} \sigma_\varphi \sin^2 \Psi - \frac{\nu}{E} (\sigma_I + \sigma_{II})$$

Avec E et ν : respectivement module d'Young et coefficient de Poisson macroscopiques.

Ainsi, la déformation annoncée par la théorie de l'élasticité isotrope est, pour un angle φ donné, une fonction linéaire de $\sin^2 \Psi$.

Annexe 3 Comportement mécanique de la phase ex- β chargée en oxygène et en hydrogène

L'étude du comportement mécanique de la phase ex- β chargée en oxygène et en hydrogène a été faite par une étudiante en formation en alternance (M1 et M2), dont le co-encadrement a fait partie intégrante des travaux de thèse ici présentés.

D'une façon générale, JESSON (2011) a appliqué le protocole d'oxydation mis au point par STERN (2007) sur des plaquettes en Zy-4 pré-hydrurées sous flux de vapeur d'argon et d'hydrogène chez AREVA CEZUS. Ces plaquettes ont été oxydées à haute température en ambiance vapeur (conditions APRP), puis homogénéisées sous vide et trempées. Les matériaux modèles de phase ex- β chargée en oxygène et hydrogène ainsi obtenus ont subi des nombreux contrôles d'homogénéité. Ils ont été testés par la suite en traction à différentes températures. Dans le cadre de son travail elle a inclut les résultats bruts des expériences similaires menées par STERN (2007) afin d'obtenir une loi pour décrire le comportement plastique du matériau oxydé avec ou sans hydrogène.

Un résumé de son travail (JESSON, 2011) est présenté dans cette annexe.

3.1. Protocole d'élaboration des matériaux types

Pour caractériser la phase ex-beta chargée en O et en H, des matériaux modèles ont d'abord été élaborés. Pour ce faire, des plaquettes de 1,3mm d'épaisseur de Zy-4 détendu ont été prélevées sur un feuillard. Ces plaquettes ont subi la préparation suivante (Figure 98) :

- 1^{ère} étape : Hydruration sous flux d'argon chez CEZUS-Paimboeuf AREVA
- 2^{ème} étape : Oxydation à haute température en ambiance vapeur (DEZIROX 1) suivie d'une trempe à l'eau
- 3^{ème} étape : Homogénéisation en phase β dans des ampoules sous vide primaire en four statique, suivie d'une trempe à l'eau.
- 4^{ème} étape : Prélèvement des éprouvettes de traction, et des éprouvettes pour les contrôles de l'homogénéité (C1 à C4) sur les plaquettes (Figure 97).

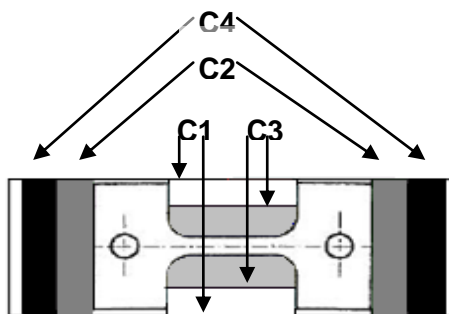


Figure 97 : Repères éprouvettes usinées sur chaque plaquette.

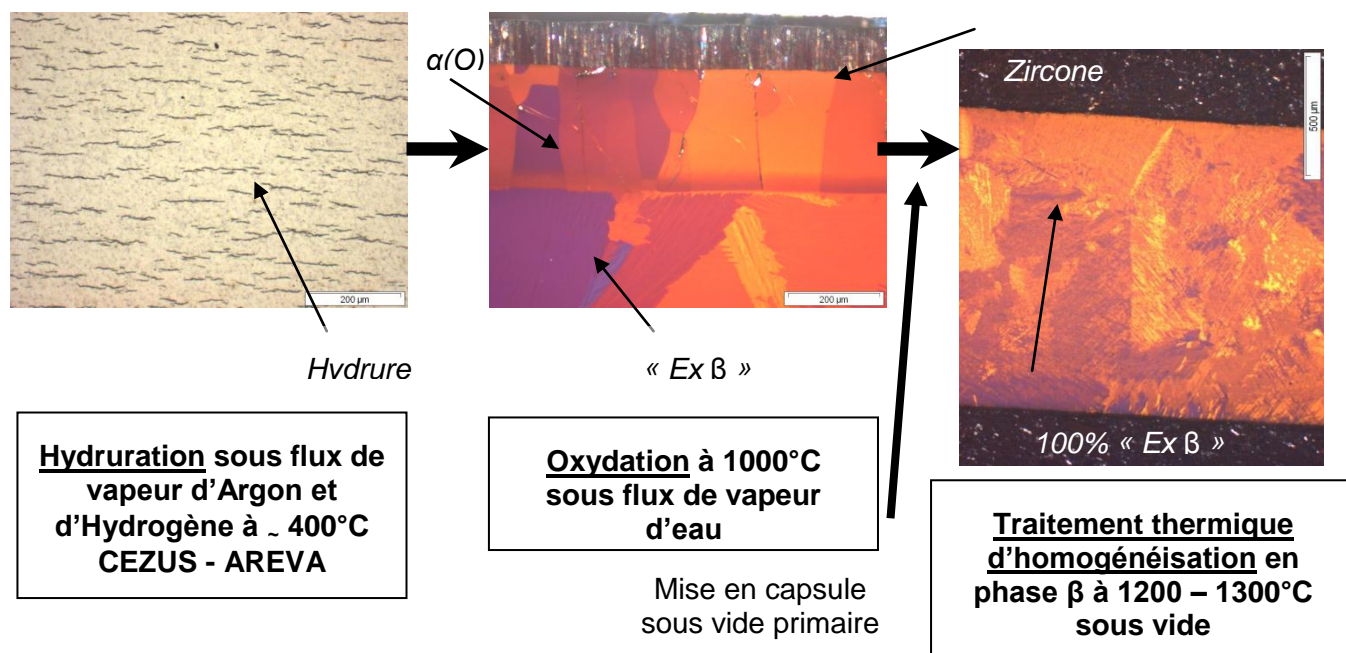


Figure 98 : Illustration du protocole de préparation de « matériaux modèles » - Observation de la microstructure à chaque étape.

Les teneurs en hydrogène et en oxygène initialement visées sont présentées dans le Tableau 9 :

Matériau	Teneur visée en hydrogène (ppm)	Teneur visée en oxygène (%mass.)	Traitement thermique d'homogénéisation	Nombre de plaquettes
Zy-4 « ex β »	150	0,14	1200°C – 3h	10
		0,25	1200°C – 3h	10
	300	0,14	1200°C – 3h	5
		0,25	1200°C – 3h	5
		0,5	1300°C – 3h	5
		0,75	1300°C – 3h	5
	600	0,14	1200°C – 3h	2
		0,25	1200°C – 3h	2
		0,5	1300°C – 3h	1
		0,75	1300°C – 3h	1

Tableau 9 : Descriptif de la préparation des échantillons de Zy-4 « ex β », chargés en hydrogène et en oxygène à différentes teneurs.

Les teneurs en hydrogène visées, comprises entre 150 et 600ppm, correspondent aux concentrations observées entre le début et la fin de vie du combustible. Les teneurs en oxygène visées sont quant à elles comprises entre 0,14 et 0,75 % mass. O.

3.2. Contrôle de la teneur en hydrogène et en oxygène

La **teneur en hydrogène** a été contrôlée comme suit :

- Des mesures ont été réalisées sur des échantillons témoins, lors du protocole d'hydruration des plaquettes, par CEZUS-AREVA.
- Des observations en microscopie optique (lumière blanche) avant oxydation ont permis de constater que la répartition des hydrures n'est pas homogène dans toute la longueur pour certaines des plaquettes hydrurées à 300 ppm.



Figure 99 : Révélation des hydrures en microscopie optique (lumière blanche) pour une plaquette hydrurée à 300 ppm H.

- Des essais de calorimétrie menés sur les éprouvettes C1 à C4 obtenues à partir de chaque plaquette (dans l'état métallurgique final en structure « ex β ») ont permis d'estimer la teneur en hydrogène réelle. L'incertitude sur la mesure est d'environ ± 50 ppm.

La Figure 100 compare les valeurs de la teneur en hydrogène estimées d'après la calorimétrie et mesurées lors du protocole d'hydruration par CEZUS-AREVA :

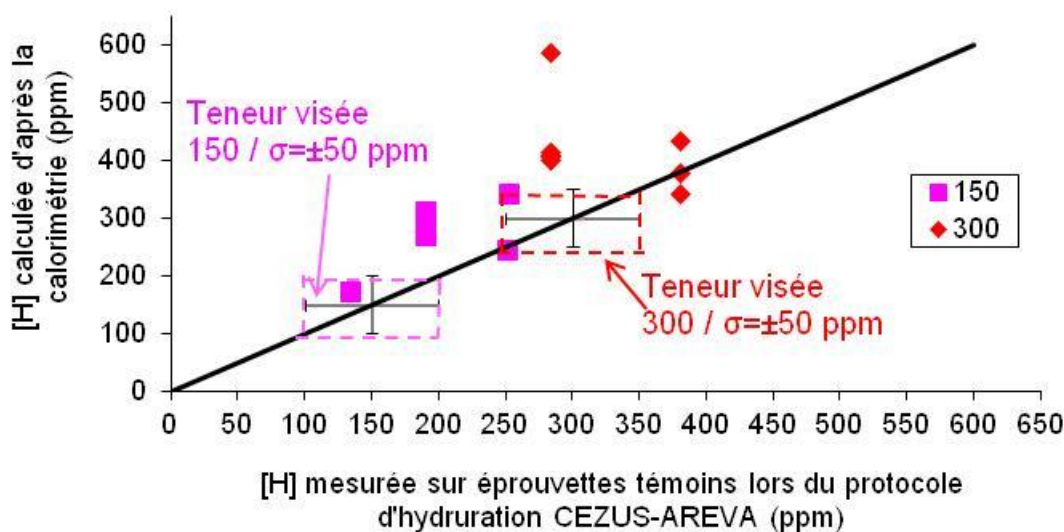


Figure 100 : Teneur en hydrogène estimée d'après la calorimétrie en fonction de la teneur en hydrogène mesurée lors du protocole d'hydruration sur échantillons témoins par CEZUS-AREVA

D'une façon générale, les teneurs en hydrogène estimées sont en général supérieures à celles visées.

La **teneur en oxygène** a été contrôlée par plusieurs méthodes :

- La mesure du Gain de Masse (GdM) lors de l'oxydation a été utilisée comme premier méthode de contrôle.

- La mesure du Pouvoir Thermo-Electrique (PTE) a montré que les échantillons étaient en général suffisamment homogènes en oxygène et a permis d'écarter ceux qui ne l'étaient pas.
- La microdureté dans la demi-zone utile de l'éprouvette de traction rompue a été utilisée selon la relation $Hv(0,1)_{Zy-4} = 370 \times [O] + 224$ (BRACHET et al., 2008) qui ne tient pas compte de la teneur en hydrogène.
- La microsonde électronique de Castaing, initialement utilisée a dû être écartée car elle surestime systématiquement la teneur en oxygène

Des résultats similaires ont été obtenus pour la teneur en oxygène par GdM et par microdureté. Le Tableau 10 résume les teneurs en O et en H des éprouvettes homogénéisées :

Matériau	Repère éprouvette	[H] _{calorimétrie} (ppm)	[O] _{microdureté} en %mass.
Zy-4 (O) (éprouvettes STERN ré-exploitées dans cette étude)	94	10	0,14
	57	10	0,11
	183	10	0,07
	185	10	0,01
	108	10	0,27
	86	10	0,23
Zy-4 (H + O)	444	340	0,14
	255	175	0,10
	379	410	0,15
	386	415	0,11
	423	280	0,17
	432	285	0,27
	427	280	0,27
	421	270	0,22
	434	245	0,29
	399	340	0,25
	373	410	0,23
	395	435	0,23
	404	380	0,28

Tableau 10 : Teneur en oxygène (par microdureté) et d'hydrogène (par calorimétrie) des plaquettes homogénéisées.

3.3. Sollicitation des éprouvettes par essai de traction

La géométrie de l'éprouvette de traction plate est présentée dans la Figure 101 :

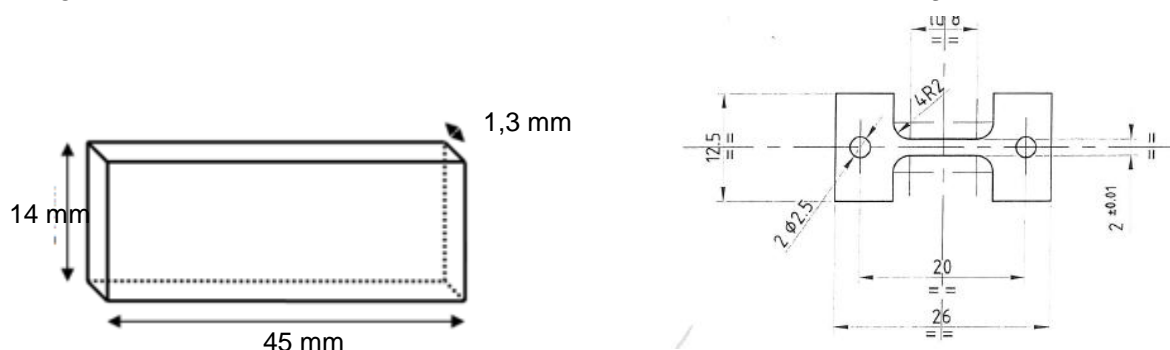


Figure 101 : Dimensions des plaquettes et de l'éprouvette de traction (prélevée sur la plaquette), utilisées dans l'étude.

Comme la section utile de l'éprouvette était trop petite pour y fixer un extensomètre, les déplacements correspondent à des déplacements de la traverse. Les essais de traction ont été réalisés avec une cellule de force de 5kN à une vitesse de déformation de $5 \cdot 10^{-2}$ /s, à des températures comprises entre -150°C et 135°C . Toutes les données des échantillons non hydrurés de l'étude d'STERN [3] ont été ré-exploitées à partir de ses fichiers bruts, pour être intégrés à cette étude.

Suite au dépouillement des courbes de traction, il a été constaté que :

- En accord avec STERN [3], la limite d'élasticité (Figure 102) et la résistance maximale augmentent linéairement avec la teneur en oxygène :

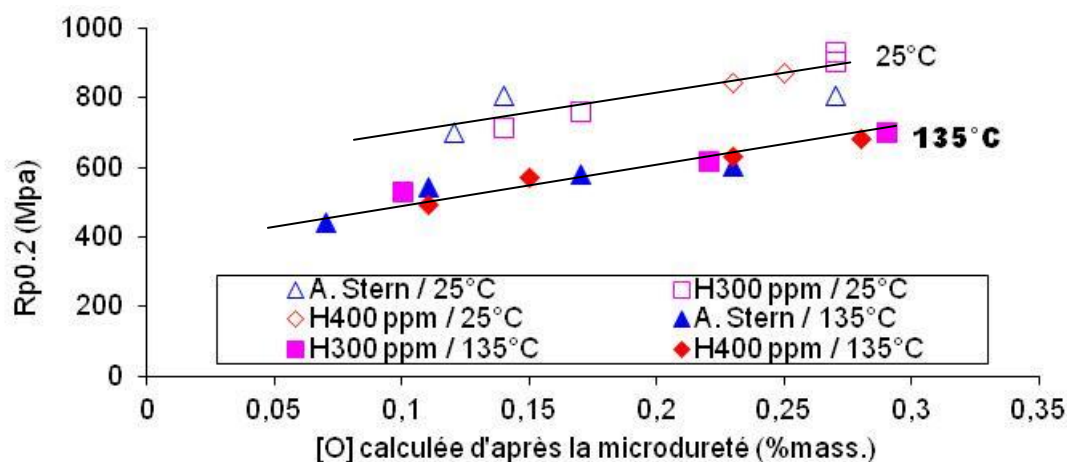


Figure 102 : Evolution de $R_{p0.2}$ en fonction de la teneur en oxygène (microdureté) à 25 et 135°C ,

- L'allongement à rupture diminue lorsque la teneur en oxygène augmente (Figure 103), mais l'hydrogène ne présente pas une influence claire sur l'allongement à rupture.

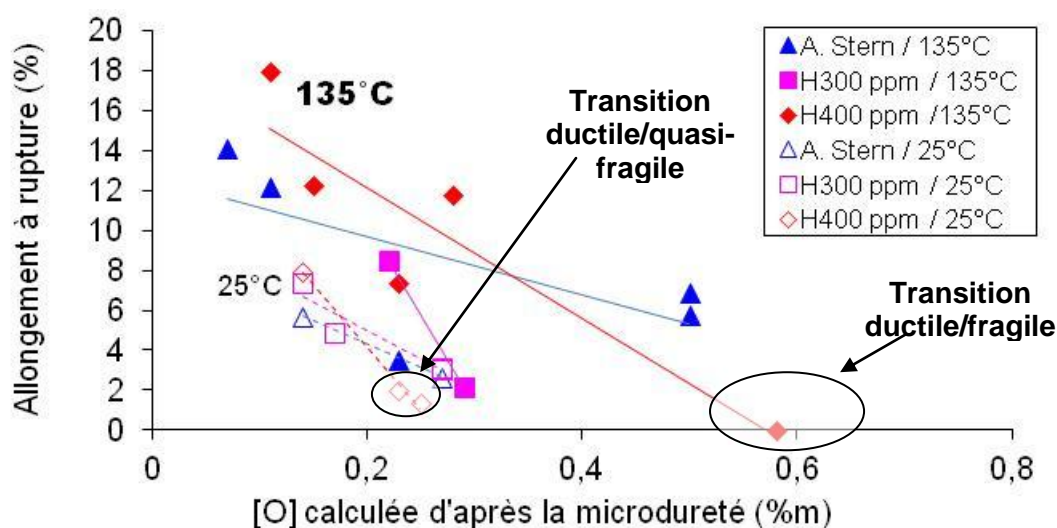


Figure 103 : Allongement à rupture des éprouvettes hydrurées et oxydées, testées à 25 et 135°C

- L'oxygène fragilise les alliages de zirconium en réduisant la ductilité et en augmentant la résistance mécanique.
- L'effet de l'hydrogène est moins clair. Il n'est observé qu'à 0,5% mass. O (Figure 104 et Figure 105)

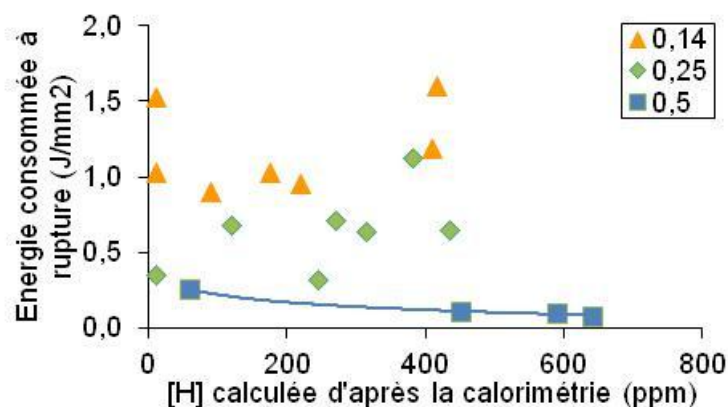


Figure 104 : Evolution de l'énergie de rupture (définie comme l'aire sous la courbe de traction) en fonction de la teneur en hydrogène pour les essais de traction réalisés à 135°C

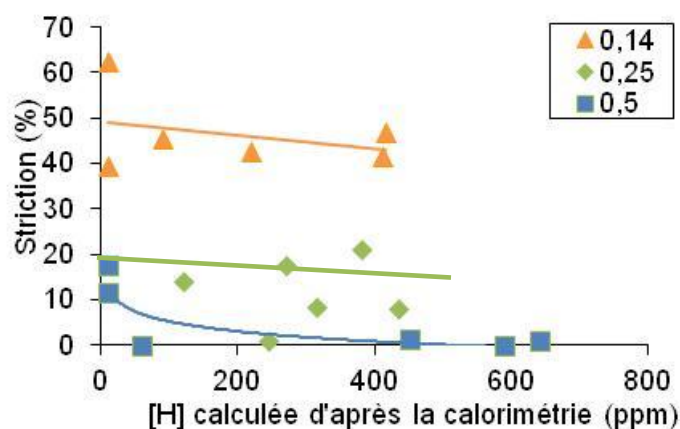


Figure 105 : Evolution de la striction en fonction de la teneur en hydrogène pour les essais de traction réalisés à 135°C

- L'effet « fragilisant » de l'hydrogène ici constaté est nettement moins marqué que celui observé dans des études précédentes réalisées sur géométrie gaine (Figure 106). On peut donc supposer la présence d'un effet de « structure » entre géométries plaquette (notre étude) et gaine (BRACHET et al., 2008).

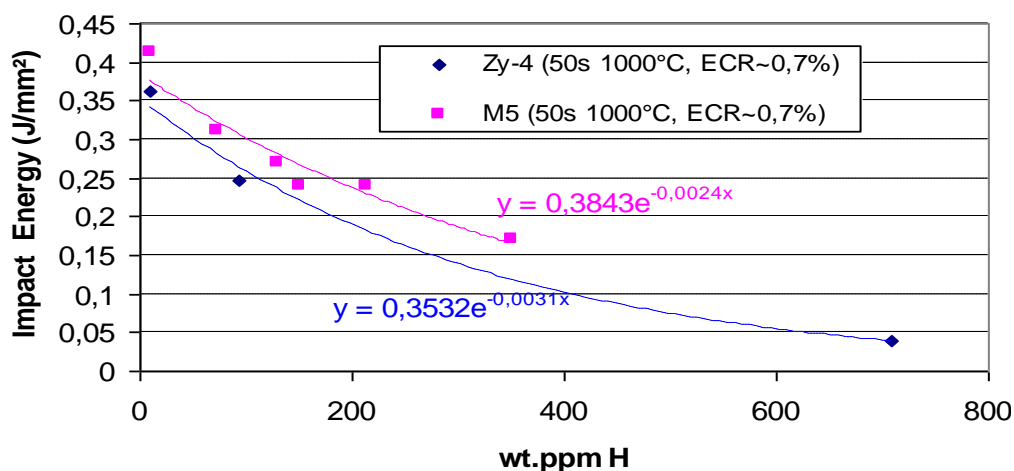


Figure 106 : Evolution de l'énergie d'impact en fonction de la teneur d'hydrogène pour des essais de résilience menés sur des éprouvettes sous forme de gaine (BRACHET et al., 2008)

- Lorsque la température de sollicitation diminue, la résistance mécanique (donc la limite d'élasticité) augmente.

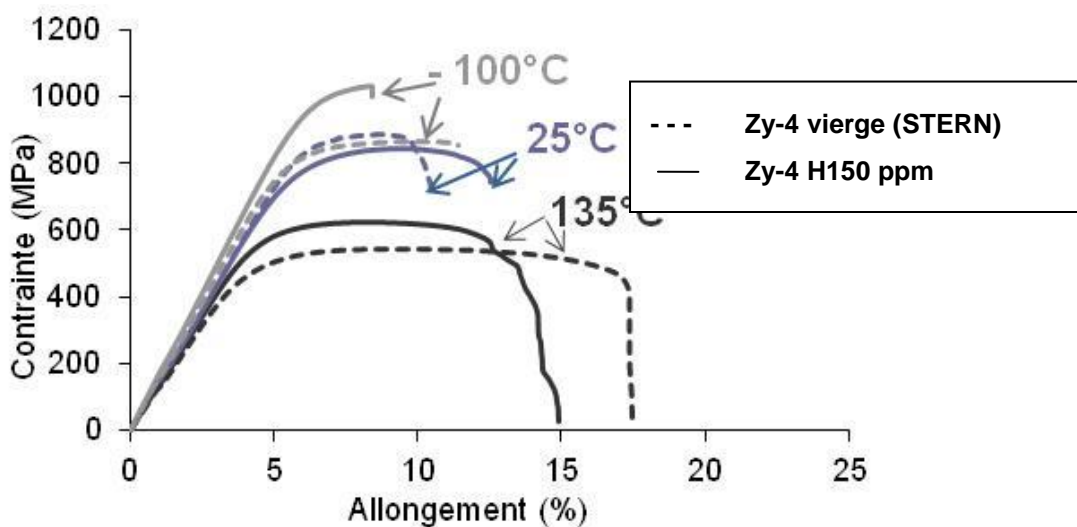


Figure 107 : Courbes de traction d'alliages de Zy-4 de teneur nominale en oxygène et 150 ppm d'hydrogène visé.

3.4. Fractographies

De manière générale, le mode de rupture est transgranulaire (pas de décohésions intergranulaires observées)

3.4.1. Echantillons rompu à T<20°C (teneur nominale en oxygène et 150 ppm d'hydrogène) (planche 1)

Dans ce domaine de températures d'essai, on observe l'effet fragilisant de l'hydrogène dès l'ajout de 150 ppm. Pour les échantillons hydrurés, le faciès granuleux (cupules plates) traduit leur faible ductilité alors que les matériaux non hydrurés présentent un faciès ductile « classique » (fines cupules plus ou moins sphériques).

3.4.2. Echantillon rompu à 135°C (teneur nominale en oxygène) (planche 1)

En dehors d'une différence de taille de cupules, on n'observe pas de disparité significative du mode de rupture entre les matériaux vierges et ceux hydrurés. Dans tous les cas, on constate un mode de rupture transgranulaire ductile à cupules.

3.4.3. Echantillon à 0,25%mass. O rompu à 25°C (planche 2)

Pour l'échantillon non hydruré, on observe un mode de rupture mixte ductile à cupules et fragile par clivage (présence de « rivières » caractéristiques sur le faciès), cohérent avec une striction faible. Curieusement, pour les échantillons hydrurés, on n'observe pas de clivage mais un faciès « rugueux à cupules plates ». On peut simplement remarquer que le mode d'endommagement lié à la présence d'hydrogène apparaît différent du mode de fragilisation (clivage) lié à l'oxygène seul.

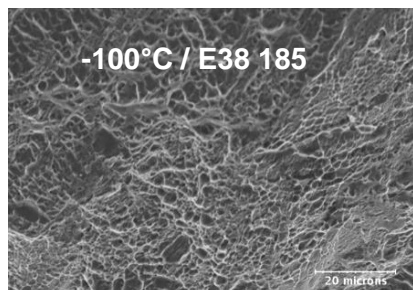
3.4.4. Echantillon à 0,25%mass. O testés à 135°C (planche 2)

Pour l'échantillon non hydruré on retrouve un faciès mixte ductile à cupules avec une moindre proportion de zones fragiles par rapport à la température ambiante, ce qui est cohérent avec une striction plus élevée. Dans les cas des échantillons hydrurés, on observe deux types de faciès :

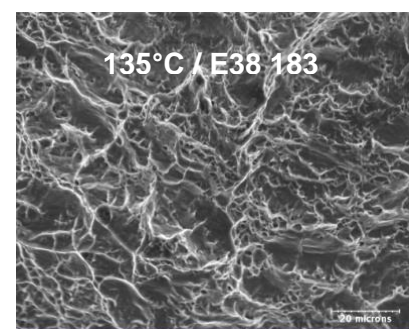
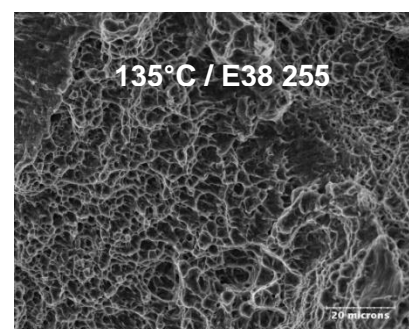
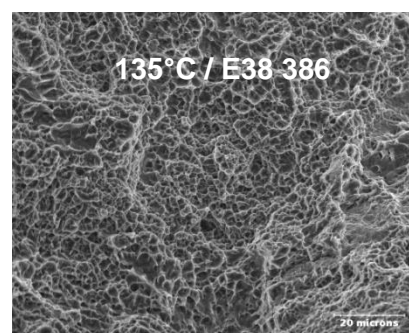
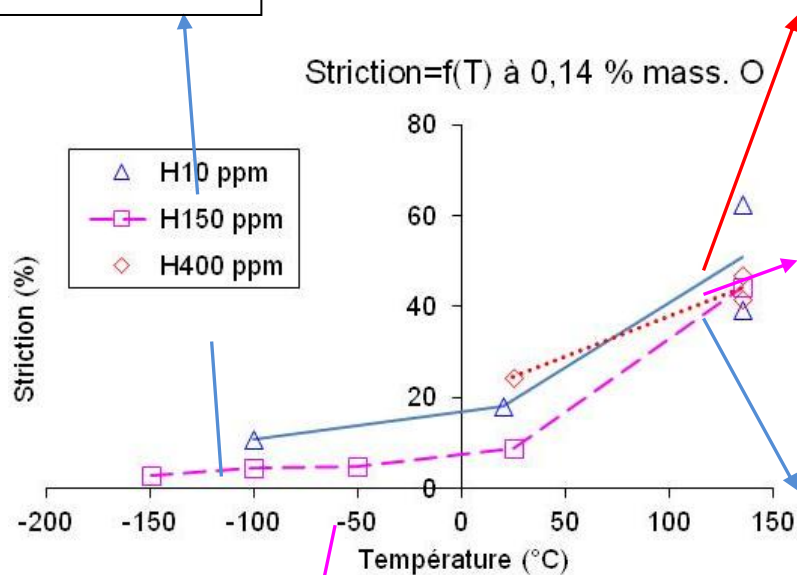
- Pour les échantillons présentant les strictions les plus faibles : un faciès mixte avec clivage et zones « rugueuses » (cupules aplaties), qui correspond au faciès du E38 434 et du E38 425.
- Pour les échantillons présentant les strictions les plus élevée : un faciès « rugueux à cupules plates » avec parfois l'existence de sous-structures fines aiguillées (E38 395) qui rappelle la structure en lamelles « ex β »

Echantillons de Teneur en
oxygène :

0,14%mass.



NON HYDRURE



NON HYDRURE

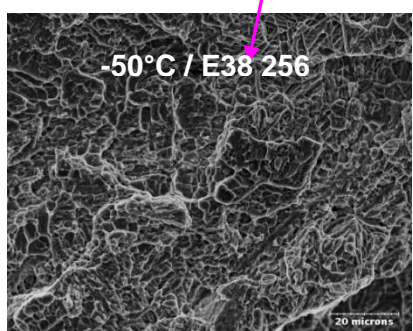


Figure 108 : Fractographie des éprouvettes de traction à 0,14 % mass. O et hydrurées jusqu'à 400 ppm.

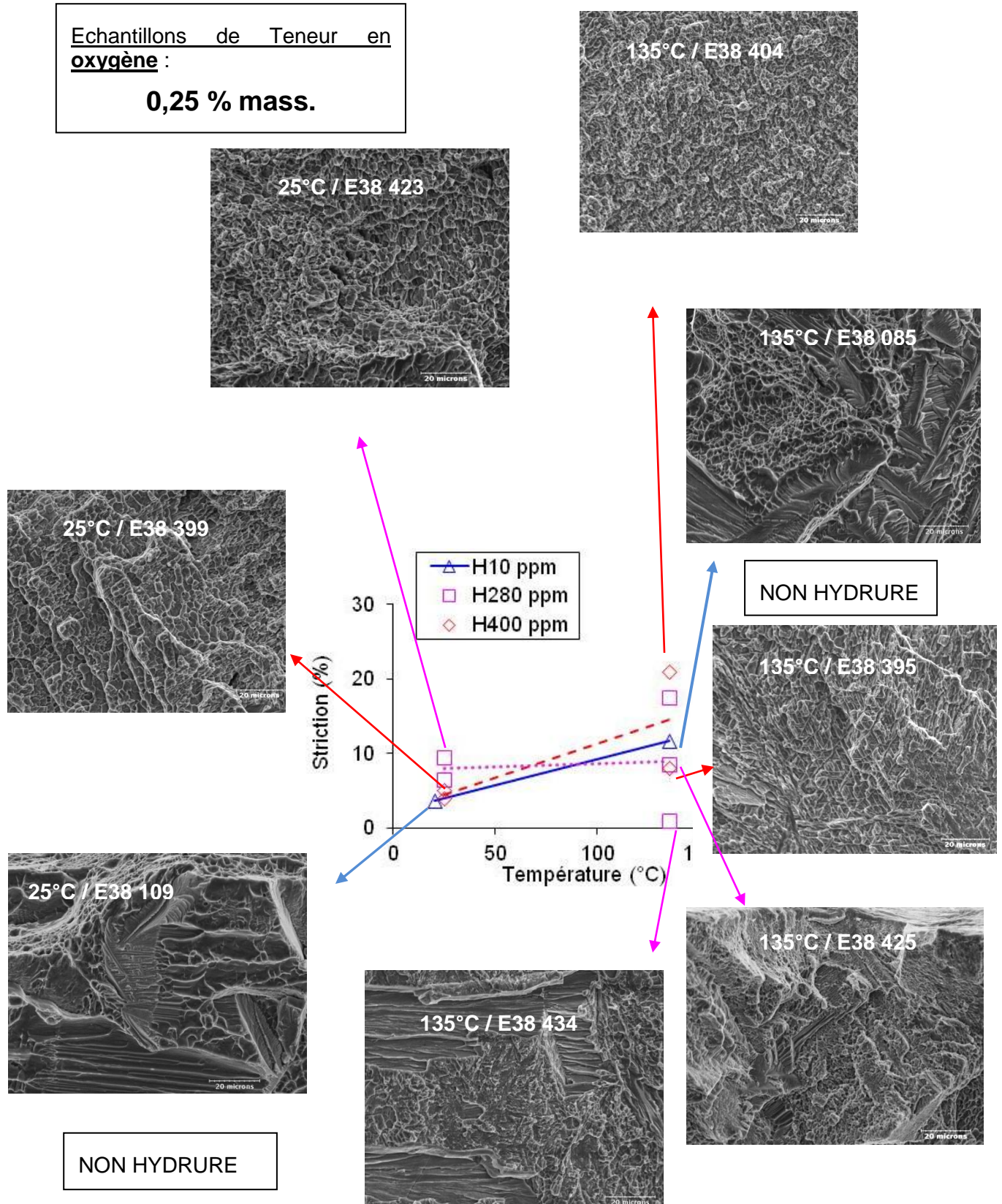


Figure 109 : Fractographie des éprouvettes de traction à 0,25 % mass. O et hydrurées jusqu'à 400 ppm.

3.5. Loi de comportement plastique

Une loi avec écrouissage de type Ludwik a été formulée pour décrire le comportement plastique du Zy-4 chargé en oxygène et en hydrogène.

$$\sigma = R_{p0,2} + K \varepsilon_p^n$$

Avec $R_{p0,2}$: limite d'élasticité à 0,2% d'allongement

ε_p : déformation plastique vraie

K et n : paramètres de la loi de Ludwik

Pour déterminer les paramètres, les courbes de traction expérimentales ont été tracées en contrainte vraie et en déformation vraie. Puis pour chaque essai de traction, K et n ont été calculés.

Les trois paramètres ont été tracés en fonction de la concentration en oxygène C_O (%mass. O), de la température T (°C) et de la teneur en hydrogène C_H (ppm) comme illustré dans la figure suivante :

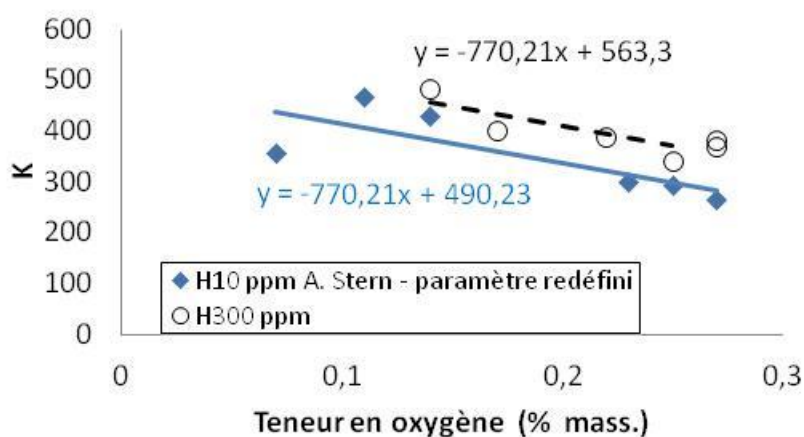


Figure 110 : Evolution du paramètre k en fonction de la teneur en oxygène pour des échantillons de Zy-4 de structure « ex β », hydurés, oxydés et testés à 25 et 135°C.

Par la suite, l'évolution des paramètres suivante a été identifiée :

$$n = 0,0008T - 0,7945C_O + 0,3346$$

$$K \text{ (MPa)} = -770,21C_O + 0,2211C_H + 488,12$$

$$R_{p0,2} \text{ (MPa)} = 953,11C_O - 2,0066T + 675,95$$

Le domaine de validité de cette loi correspond à :

$$0 < C_H < 400 \text{ ppm}$$

$$C_O < 0,30\% \text{ mass. O}$$

$$25^\circ\text{C} < T < 135^\circ\text{C}$$

Hormis l'introduction de l'hydrogène comme paramètre d'étude, la loi de comportement proposée dans cette étude, diffère de celle de STERN principalement à cause du fait que nous ne considérons pas le coefficient indicatif d'écrouissage « n » comme étant constant.

La Figure 111 montre une comparaison entre la courbe expérimentale et les lois proposées par STERN et dans cette étude, pour à un échantillon uniquement oxydé à 0,25% mass., et testé à 135°C.

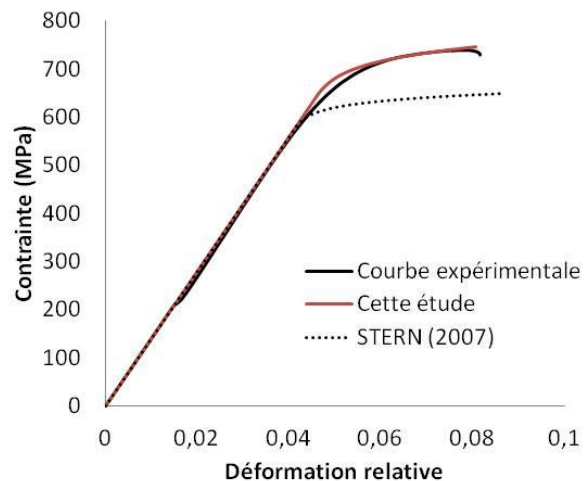


Figure 111 : Courbe de traction vraie et simulée pour un échantillon de Zy-4 de structure « ex β » uniquement oxydé à 0,25% mass. et testé en traction à 135°C

La loi établie dans cette étude reproduit correctement la courbe expérimentale dans la zone plastique homogène, contrairement à la loi établie par STERN (2007). D'une façon générale, un écart maximal de 10% a été observé entre la courbe obtenue par la loi établie et la courbe expérimentale. Compte tenu de ce faible écart, on peut considérer que la loi de comportement macroscopique plastique proposée dans cette étude reproduit correctement le comportement des échantillons de Zy-4 hydrurés et oxydés en phase « ex β ».

Annexe 4 Diffraction RX¹⁴

Cette annexe présente de manière plus détaillée l'expérience de diffraction RX menée sur la zircone obtenue par oxydation en conditions APRP d'une gaine en Zy-4. L'étude a consisté à identifier les phases de zircone produites suite à l'oxydation et la trempe, à température ambiante.

4.1. Analyses

Des fragments naturellement écaillés d'un tube oxydé 1492s à 1200°C (ECR de 17%) et trempé ont été broyés (broyeur en agate) et déposés sur un support de poudre classique. Les analyses ont été effectuées sur l'installation de diffraction X « CPS-120 » du SRMA-LA2M. Les diagrammes collectés ont été analysés avec le programme XND (méthode Rietveld). Les analyses ont été effectuées dans les conditions suivantes :

- installation CPS-120
- rayonnement incident $\text{CuK}\alpha 1$ (1,540596 Å) pur (monochromateur plan Ge)
 - faisceau parallèle :
 - équatorial : largeur 5mm, divergence 1° (Sollers)
 - radial : largeur 50µm, divergence négligeable (faisceau diffracté)
- montage asymétrique
 - incidence 5°
 - support échantillon tournant
- détecteur CPS-120
 - 8000 canaux sur 120°
 - Calibration :
 - poudre Y_2O_3 recuite
 - fichier ET090309.CAL

4.2. Résultats

Le diagramme obtenu est reporté ci-dessous, ainsi que le résultat des essais d'affinements Rietveld :

¹⁴ Données internes CEA (GOSSET, 2009).

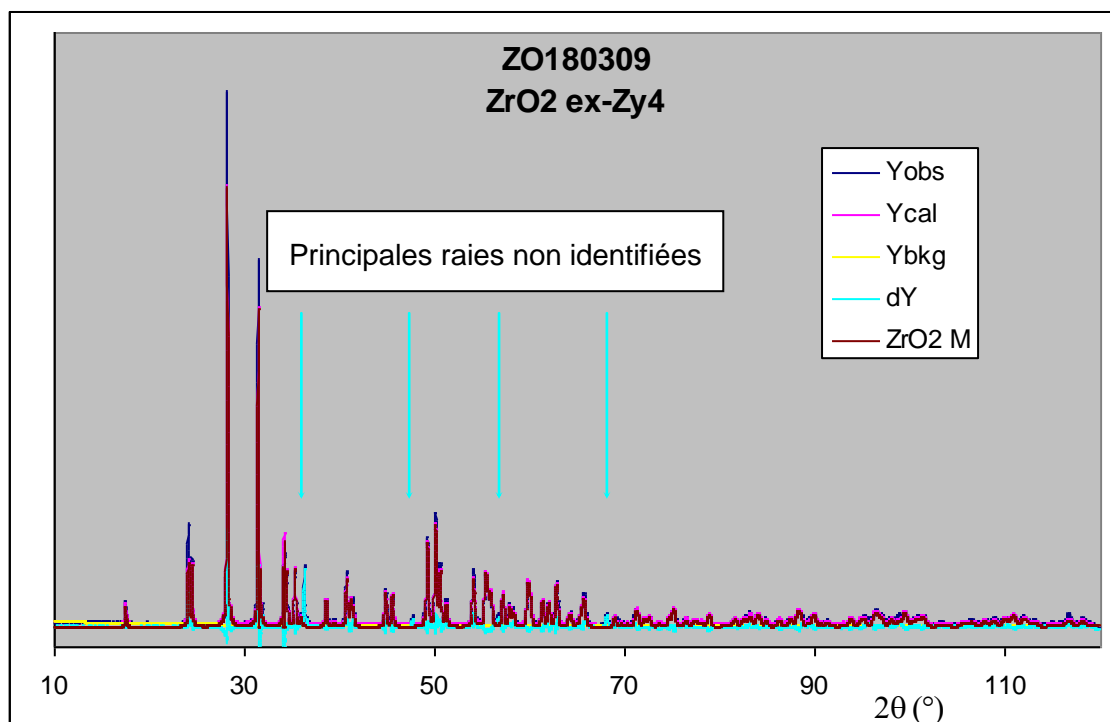


Figure 112 : Diffractogramme obtenu en considérant la phase monoclinique et la phase tétragonale de la zircone obtenue par oxydation d'une gaine en Zy-4 à 1200°C en ambiance vapeur.

Le matériau apparaît essentiellement constitué de zircone monoclinique ($\text{ZrO}_2\text{-m}$). Seules quelques raies n'appartiennent pas au diagramme de cette phase. Les paramètres de maille sont, dans la limite des incertitudes, caractéristiques d'une zircone monoclinique.

Paramètres ex-Zy-4	
a Å	5,1477 ± 0,0025
b Å	5,2085 ± 0,0025
c Å	5,3131 ± 0,0025
β °	99,17 ± 0,02
v Å ³	140,63 ± 0,23

Tableau 11 : Paramètres de maille obtenus à partir des affinements Rietveld.

4.3. Discussion

L'analyse montre essentiellement la présence de zircone monoclinique. Ceci peut s'expliquer simplement à partir de l'histoire thermique des éprouvettes :

- Bien que l'oxydation à haute température conduise le plus probablement à la formation de zircone quadratique (phase stable dans le domaine considéré), le refroidissement, même rapide (trempe à l'eau) induit le retour (transition du premier ordre) à la phase normalement présente à basse température (monoclinique).
- Ni le niveau de contraintes résiduelles ou la taille des particules (cf. G. Baldinozzi *et al.*, PRL 2003) ni la concentration en ajouts (Sn dans Zy4) ne permettent de stabiliser la phase tétragonale.
- Le changement brutal des paramètres (dilatation de 3% en volume, qui passe de 139 Å³ pour la phase quadratique à 143 Å³ pour la phase monoclinique, distorsion angulaire de 9°) lors de la transition au refroidissement induit la fissuration de la couche d'oxyde à une échelle submicronique. L'analyse de Williamson-Hall a été utilisée pour estimer la taille des

particules diffractant à partir des largeurs de raies. En effet les particules ont une taille de l'ordre de 1000 Å. Cette valeur se trouve être proche de la limite en-dessous de laquelle une fraction notable de zircone quadratique pourrait être stabilisée du fait des tensions de surface (KISI et al., 1998 ; BALDINOZZI *et al.*, 2003).

- Les phases secondaires n'ont pas pu être identifiées.

Annexe 5 Calcul de contraintes thermiques

5.1. Calcul analytique pour une géométrie plaque

Nous présentons ici la modélisation d'une plaque plane infinie d'un matériau stratifié soumise à un refroidissement dans le domaine élastique. Ce matériau a été considéré pour ce calcul comme étant constituée par trois couches. Chacune de ces couches est supposée isotrope, mais avec des propriétés mécaniques différentes.

La plaque plane n'est qu'une simplification de la géométrie cylindrique de la gaine, où on suppose un rayon infini du tube, comme on peut voir dans la Figure 113 :

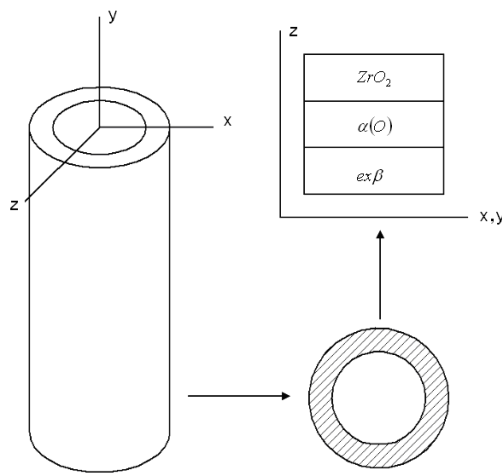


Figure 113 : Schéma de la simplification de la géométrie.

Loi de comportement

Afin de le simplifier, le calcul a été construit à partir de la loi de thermo-élasticité linéaire isotrope

$$\varepsilon_{ij} = \frac{1+\nu}{E} \sigma_{ij} - \frac{\nu}{E} \sigma_{kk} \delta_{ij} + \alpha \theta \delta_{ij}$$

Où : ν : Coefficient de Poisson

E : Module d'Young

$\delta_{ij} \begin{cases} = 1 \rightarrow i = j \\ = 0 \rightarrow i \neq j \end{cases}$: Symbole de Kronecker

α : Coefficient de dilatation thermique

$\theta = T - T_0$: Changement de température

Cette loi peut aussi s'écrire :

$$\begin{bmatrix} \varepsilon_{11} & \varepsilon_{12} & \varepsilon_{13} \\ \varepsilon_{21} & \varepsilon_{22} & \varepsilon_{23} \\ \varepsilon_{31} & \varepsilon_{32} & \varepsilon_{33} \end{bmatrix} = \frac{1+\nu}{E} \begin{bmatrix} \sigma_{11} & \sigma_{12} & \sigma_{13} \\ \sigma_{21} & \sigma_{22} & \sigma_{23} \\ \sigma_{31} & \sigma_{32} & \sigma_{33} \end{bmatrix} + \left(-\frac{\nu}{E} (\sigma_{11} + \sigma_{22} + \sigma_{33}) + \alpha (T - T_0) \right) \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix}$$

Hypothèses

On suppose que :

- La plaque est stratifiée avant et après le refroidissement, si bien qu'on ne considère pas le changement de phase.
- Le coefficient de poisson est le même pour les trois couches ($\nu = 0,3$).
- Les matériaux dont la gaine est constituée sont isotropes, c'est-à-dire, $\alpha_{11} = \alpha_{22} = \alpha$ sur un point déterminé. Celle-ci est une hypothèse forte, dans la mesure où la couche $\alpha(O)$, particulièrement texturée, n'est pas isotrope en ce qui concerne la dilatation thermique.

Conditions aux limites

On suppose que :

- Le déplacement de la frontière est libre dans l'axe z, si bien que $\sigma_{33} = 0$ pour tous les points dans le matériau stratifié.
- Aucune contrainte n'est imposée. Seules les contraintes dues à la différence entre les dilatations thermiques des couches ont été prises en compte. On a alors :

$$\sigma_{ij} = \sigma_{ji} = 0 \text{ si } i \neq j$$

- Le corps (la plaque) se trouve en équilibre :

$$F_{(ZrO_2)} + F_{(\alpha(O))} + F_{(ex\beta)} = 0$$

$$\sigma_{11(ZrO_2)} h_{(ZrO_2)} + \sigma_{11(\alpha(O))} h_{(\alpha(O))} + \sigma_{11(ex\beta)} h_{(ex\beta)} = 0$$

$$\sigma_{22(ZrO_2)} h_{(ZrO_2)} + \sigma_{22(\alpha(O))} h_{(\alpha(O))} + \sigma_{22(ex\beta)} h_{(ex\beta)} = 0$$

- La déformation a lieu en « bloc », c'est-à-dire, $\varepsilon_{11}(ZrO_2) = \varepsilon_{11}(\alpha(O)) = \varepsilon_{11}(ex\beta)$

Pour une couche de ce matériau soumise à une dilatation (ou contraction) thermique sous ces hypothèses et conditions aux limites, on obtient :

$$\begin{bmatrix} \varepsilon_{11} & 0 & 0 \\ 0 & \varepsilon_{22} & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_{33} \end{bmatrix} = \frac{1+\nu}{E} \begin{bmatrix} \sigma_{11} & 0 & 0 \\ 0 & \sigma_{22} & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} + \left(-\frac{\nu}{E} (\sigma_{11} + \sigma_{22}) + \alpha(T - T_0) \right) \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix}$$

Pour l'ensemble du matériau stratifié on a le système d'équations suivant :

$$\text{Couche de } ZrO_2 : \begin{bmatrix} -1 & 0 & 0 & 1/E_{(ZrO_2)} & -\nu/E_{(ZrO_2)} \\ 0 & -1 & 0 & -\nu/E_{(ZrO_2)} & 1/E_{(ZrO_2)} \\ 0 & 0 & -1 & -\nu/E_{(ZrO_2)} & -\nu/E_{(ZrO_2)} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \varepsilon_{11(ZrO_2)} \\ \varepsilon_{22(ZrO_2)} \\ \varepsilon_{33(ZrO_2)} \\ \sigma_{11(ZrO_2)} \\ \sigma_{22(ZrO_2)} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} -\alpha_{(ZrO_2)}(T - T_0) \\ -\alpha_{(ZrO_2)}(T - T_0) \\ -\alpha_{(ZrO_2)}(T - T_0) \end{bmatrix}$$

$$\text{Couche de } \alpha(O): \begin{bmatrix} -1 & 0 & 0 & 1/E_{(\alpha(O))} & -\nu/E_{(\alpha(O))} \\ 0 & -1 & 0 & -\nu/E_{(\alpha(O))} & 1/E_{(\alpha(O))} \\ 0 & 0 & -1 & -\nu/E_{(\alpha(O))} & -\nu/E_{(\alpha(O))} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \varepsilon_{11(\alpha(O))} \\ \varepsilon_{22(\alpha(O))} \\ \varepsilon_{33(\alpha(O))} \\ \sigma_{11(\alpha(O))} \\ \sigma_{22(\alpha(O))} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} -\alpha_{(\alpha(O))}(T - T_0) \\ -\alpha_{(\alpha(O))}(T - T_0) \\ -\alpha_{(\alpha(O))}(T - T_0) \end{bmatrix}$$

$$\text{Couche de } ex\beta: \begin{bmatrix} -1 & 0 & 0 & 1/E_{(ex\beta)} & -\nu/E_{(ex\beta)} \\ 0 & -1 & 0 & -\nu/E_{(ex\beta)} & 1/E_{(ex\beta)} \\ 0 & 0 & -1 & -\nu/E_{(ex\beta)} & -\nu/E_{(ex\beta)} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \varepsilon_{11(ex\beta)} \\ \varepsilon_{22(ex\beta)} \\ \varepsilon_{33(ex\beta)} \\ \sigma_{11(ex\beta)} \\ \sigma_{22(ex\beta)} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} -\alpha_{(ex\beta)}(T - T_0) \\ -\alpha_{(ex\beta)}(T - T_0) \\ -\alpha_{(ex\beta)}(T - T_0) \end{bmatrix}$$

$$\text{Conditions aux limites : } \left\{ \begin{array}{l} \begin{bmatrix} 1 & -1 & 0 \\ 1 & 0 & -1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \varepsilon_{11(ZrO_2)} \\ \varepsilon_{11(\alpha(O))} \\ \varepsilon_{11(ex\beta)} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \end{bmatrix} \\ \begin{bmatrix} 1 & -1 & 0 \\ 1 & 0 & -1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \varepsilon_{22(ZrO_2)} \\ \varepsilon_{22(\alpha(O))} \\ \varepsilon_{22(ex\beta)} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \end{bmatrix} \\ \begin{bmatrix} h_{(ZrO_2)} & h_{(\alpha(O))} & h_{(ex\beta)} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \sigma_{11(ZrO_2)} \\ \sigma_{11(\alpha(O))} \\ \sigma_{11(ex\beta)} \end{bmatrix} = 0 \\ \begin{bmatrix} h_{(ZrO_2)} & h_{(\alpha(O))} & h_{(ex\beta)} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \sigma_{22(ZrO_2)} \\ \sigma_{22(\alpha(O))} \\ \sigma_{22(ex\beta)} \end{bmatrix} = 0 \end{array} \right.$$

5.2. Calcul analytique pour une géométrie tube

Nous présentons ici la modélisation d'un tube d'un matériau stratifié soumis à un refroidissement dans le domaine élastique. Ce matériau a été considéré pour ce calcul comme étant un stratifié constituée par trois couches. Chacune de ces couches est supposée isotrope, mais avec des propriétés mécaniques différentes.

Le problème est traité en coordonnées cylindriques. La nomenclature utilisée est montrée dans la Figure 114 :

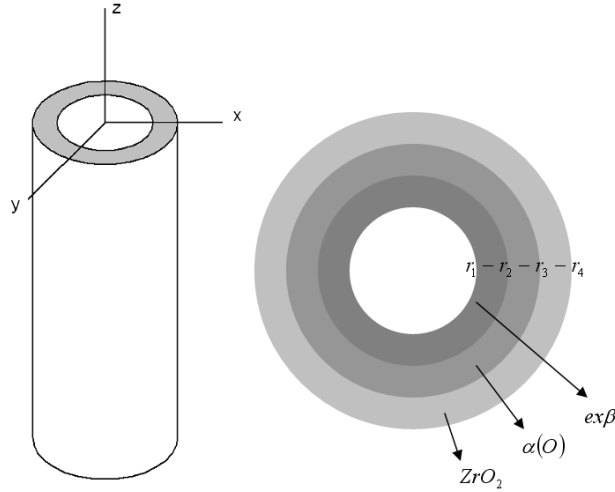


Figure 114 : Nomenclature utilisée en coordonnées cylindriques.

Loi de comportement

Afin de le simplifier, le calcul a été construit à partir de la loi de thermo-élasticité linéaire isotrope

$$\varepsilon_{ij} = \frac{1+\nu}{E} \sigma_{ij} - \frac{\nu}{E} \sigma_{kk} \delta_{ij} + \alpha \theta \delta_{ij}$$

Où : ν : Coefficient de Poisson

E : Module d'Young

$\delta_{ij} \begin{cases} = 1 \rightarrow i = j \\ = 0 \rightarrow i \neq j \end{cases}$: Symbole de Kronecker

α : Coefficient de dilatation thermique

$\theta = T - T_0$: Changement de température

Pour le cas spécifique en présence de déformations thermiques, cette loi peut aussi s'écrire de la façon suivante avec les coefficients de Lamé (en coordonnées cylindriques) :

$$\begin{bmatrix} \sigma_{rr} & \sigma_{r\theta} & \sigma_{rz} \\ \sigma_{\theta r} & \sigma_{\theta\theta} & \sigma_{\theta z} \\ \sigma_{zr} & \sigma_{z\theta} & \sigma_{zz} \end{bmatrix} = 2\mu \begin{bmatrix} \varepsilon_{rr} - \alpha\theta & \varepsilon_{r\theta} & \varepsilon_{rz} \\ \varepsilon_{\theta r} & \varepsilon_{\theta\theta} - \alpha\theta & \varepsilon_{\theta z} \\ \varepsilon_{zr} & \varepsilon_{z\theta} & \varepsilon_{zz} - \alpha\theta \end{bmatrix} + (\lambda(\varepsilon_{rr} + \varepsilon_{\theta\theta} + \varepsilon_{zz} - 3\alpha\theta)) \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix}$$

$$\text{Où : } \mu = \frac{E}{2(1+\nu)}$$

$$\lambda = \frac{E\nu}{(1+\nu)(1-2\nu)}$$

$$\begin{bmatrix} \varepsilon_{rr} & \varepsilon_{r\theta} & \varepsilon_{rz} \\ \varepsilon_{\theta r} & \varepsilon_{\theta\theta} & \varepsilon_{\theta z} \\ \varepsilon_{zr} & \varepsilon_{z\theta} & \varepsilon_{zz} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \frac{\partial u_r}{\partial r} & \frac{1}{2} \frac{\partial u_\theta}{\partial r} + \frac{1}{2r} \left(\frac{\partial u_r}{\partial \theta} - u_\theta \right) & \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_r}{\partial z} + \frac{\partial u_z}{\partial r} \right) \\ \frac{1}{2} \frac{\partial u_\theta}{\partial r} + \frac{1}{2r} \left(\frac{\partial u_r}{\partial \theta} - u_\theta \right) & \frac{1}{r} \left(\frac{\partial u_\theta}{\partial \theta} + u_r \right) & \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_\theta}{\partial z} + \frac{1}{r} \frac{\partial u_z}{\partial \theta} \right) \\ \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_r}{\partial z} + \frac{\partial u_z}{\partial r} \right) & \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_\theta}{\partial z} + \frac{1}{r} \frac{\partial u_z}{\partial \theta} \right) & \frac{\partial u_z}{\partial z} \end{bmatrix}$$

Hypothèses

On suppose que :

- Le tube est stratifié avant et après le refroidissement, si bien qu'on ne considère pas le changement de phase.
- Le coefficient de poisson est le même pour les trois couches ($\nu = 0.3$).
- Les matériaux dont la gaine est constituée sont isotropes, c'est-à-dire, $\alpha_{\theta\theta} = \alpha_{rr} = \alpha_{zz} = \alpha$ sur un point déterminé. Celle-ci est une hypothèse forte, dans la mesure où la couche $\alpha(O)$, particulièrement texturée, n'est pas isotrope en ce qui concerne la dilatation thermique.

Conditions aux limites

On suppose que :

- Aucune contrainte n'est imposée. Seulement les contraintes dues à la différence entre les dilatations thermiques des couches liées a été prise en compte. On a alors :

$$\sigma_{ij} = \sigma_{ji} = 0 \text{ si } i \neq j$$

$$\sigma_{rr}(ZrO_2 @ r_4) = 0$$

$$\sigma_{rr}(ex\beta @ r_1) = 0$$

- Le corps (le tube) se trouve en équilibre :

$$\text{div } \underline{\sigma} = 0$$

- Le déplacement des frontières entre couches dû à la dilatation thermique est homogène

$$u(ex\beta @ r_2) = u(\alpha(O) @ r_2)$$

$$u(\alpha(O) @ r_3) = u(ZrO_2 @ r_3)$$

- La contrainte radiale aux frontières entre couches est continue :

$$\sigma_{rr}(ex\beta @ r_2) = \sigma_{rr}(\alpha(O) @ r_2)$$

$$\sigma_{rr}(\alpha(O) @ r_3) = \sigma_{rr}(ZrO_2 @ r_3)$$

- La déformation a lieu en « bloc », c'est-à-dire, $\varepsilon_{zz}(ZrO_2) = \varepsilon_{zz}(\alpha(O)) = \varepsilon_{zz}(ex\beta)$

Pour une couche de ce matériau soumise à une dilatation (ou contraction) thermique sous ces conditions on obtient :

$$\begin{bmatrix} \sigma_{rr} & 0 & 0 \\ 0 & \sigma_{\theta\theta} & 0 \\ 0 & 0 & \sigma_{zz} \end{bmatrix} = 2\mu \begin{bmatrix} u' - \alpha\theta & 0 & 0 \\ 0 & \frac{u}{r} - \alpha\theta & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_{zz} - \alpha\theta \end{bmatrix} + \left(\lambda \left(u' + \frac{u}{r} + \varepsilon_{zz} - 3\alpha\theta \right) \right) \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix}$$

D'où :

$$\begin{bmatrix} \sigma_{rr} \\ \sigma_{\theta\theta} \\ \sigma_{zz} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} (2\mu + \lambda)u' + \lambda \frac{u}{r} - (2\mu + 3\lambda)\alpha\theta + \lambda\varepsilon_{zz} \\ (2\mu + \lambda)\frac{u}{r} + \lambda u' - (2\mu + 3\lambda)\alpha\theta + \lambda\varepsilon_{zz} \\ \lambda \left(u' + \frac{u}{r} \right) - (2\mu + 3\lambda)\alpha\theta + (2\mu + \lambda)\varepsilon_{zz} \end{bmatrix}$$

De la condition d'équilibre on obtient :

$$\begin{aligned} \operatorname{div} \sigma &= \frac{\partial \sigma_{rr}}{\partial r} + \frac{\sigma_{rr} - \sigma_{\theta\theta}}{r} = 0 \\ (2\mu + \lambda)u'' + \lambda \frac{\partial}{\partial r} \left(\frac{u}{r} \right) + \frac{2\mu}{r} \left(u' - \frac{u}{r} \right) &= 0 \\ (2\mu + \lambda)u'' + (2\mu + \lambda) \left(\frac{u}{r} \right)' &= 0 \\ u'' + \left(\frac{u}{r} \right)' &= 0 \end{aligned}$$

En intégrant :

$$u' + \left(\frac{u}{r} \right) = A$$

$$u' r + u = Ar$$

$$(ur)' = Ar$$

En intégrant à nouveau :

$$ur = Ar^2 + B$$

$$u = Ar + \frac{B}{r}$$

Si on considère :

$$K = 2\mu + 3\lambda$$

A partir des conditions aux limites, et pour l'ensemble du matériau stratifié, on a le système d'équations suivant :

Aux interphases :

$$A_i x_i = b_i$$

$$\begin{aligned} A_1 &= \begin{bmatrix} 2(\mu(ex\beta) + \lambda(ex\beta)) & -\frac{2\mu(ex\beta)}{r_1^2} & 0 & 0 & \lambda(ex\beta) \\ 2(\mu(ex\beta) + \lambda(ex\beta)) & -\frac{2\mu(ex\beta)}{r_2^2} & -2(\mu(\alpha(O)) + \lambda(\alpha(O))) & \frac{2\mu(\alpha(O))}{r_2^2} & \lambda(ex\beta) - \lambda(\alpha(O)) \\ r_2 & \frac{1}{r_2} & -r_2 & -\frac{1}{r_2} & 0 \end{bmatrix} \\ x_1 &= \begin{bmatrix} A(ex\beta) \\ B(ex\beta) \\ A(\alpha(O)) \\ B(\alpha(O)) \\ \varepsilon_{zz} \end{bmatrix} \\ b_1 &= \begin{bmatrix} K(ex\beta)^* \alpha(ex\beta) \theta \\ K(ex\beta)^* \alpha(ex\beta) \theta - K(\alpha(O))^* \alpha(\alpha(O)) \theta \\ 0 \end{bmatrix} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 A_2 &= \begin{bmatrix} 0 & 0 & 2(\mu(ZrO_2) + \lambda(ZrO_2)) & -\frac{2\mu(ZrO_2)}{r_4^2} & \lambda(ZrO_2) \\ 2(\mu(\alpha(O)) + \lambda(\alpha(O))) & -\frac{2\mu(\alpha(O))}{r_3^2} & -2(\mu(ZrO_2) + \lambda(ZrO_2)) & \frac{2\mu(ZrO_2)}{r_3^2} & \lambda(\alpha(O)) - \lambda(ZrO_2) \\ r_3 & \frac{1}{r_3} & -r_3 & -\frac{1}{r_3} & 0 \end{bmatrix} \\
 x_2 &= \begin{bmatrix} A(\alpha(O)) \\ B(\alpha(O)) \\ A(ZrO_2) \\ B(ZrO_2) \\ \varepsilon_{zz} \end{bmatrix} \\
 b_2 &= \begin{bmatrix} K(ZrO_2) * \alpha(ZrO_2) \theta \\ K(\alpha(O)) * \alpha(\alpha(O)) \theta - K(ZrO_2) * \alpha(ZrO_2) \theta \\ 0 \end{bmatrix}
 \end{aligned}$$

et :

$$\begin{aligned}
 &(2 * \lambda(ex\beta) * S(ex\beta) * A(ex\beta)) + (2 * \lambda(\alpha(O)) * S(\alpha(O)) * A(\alpha(O))) + (2 * \lambda(ZrO_2) * S(ZrO_2) * A(ZrO_2)) + \\
 &(2\mu(ex\beta) + \lambda(ex\beta)) * S(ex\beta) + (2\mu(\alpha(O)) + \lambda(\alpha(O))) * S(\alpha(O)) + (2\mu(ZrO_2) + \lambda(ZrO_2)) * S(ZrO_2) \\
 &= K(ex\beta) * \alpha(ex\beta) \theta * S(ex\beta) + K(\alpha(O)) * \alpha(\alpha(O)) \theta * S(\alpha(O)) + K(ZrO_2) * \alpha(ZrO_2) \theta * S(ZrO_2)
 \end{aligned}$$

Où :

$$\begin{aligned}
 S(ex\beta) &= \pi * (r_2^2 - r_1^2) \\
 S(\alpha(O)) &= \pi * (r_3^2 - r_2^2) \\
 S(ZrO_2) &= \pi * (r_4^2 - r_3^2)
 \end{aligned}$$

5.3. Propriétés des matériaux prises en compte pour le calcul

5.3.1. Dilatation thermique

La variation du volume de la maille unitaire de la zircone pure est donnée en Figure 31 (KISI et al., 1998) en fonction de la température. Il est possible d'obtenir le coefficient linéaire de dilatation thermique pour la zircone monoclinique des gaines à partir de cette évolution. Par définition nous pouvons exprimer la dilatation thermique de la façon suivante :

$$\varepsilon_{th} = \alpha_l \Delta T = \frac{\Delta l}{l_0}$$

Si nous supposons que le matériau est isotrope, nous obtenons :

$$\frac{\Delta V}{V_0} = 3 \left(\frac{\Delta l}{l_0} \right) + 3 \left(\frac{\Delta l}{l_0} \right)^2 + \left(\frac{\Delta l}{l_0} \right)^3$$

$$\alpha_v \Delta T = 3\alpha_l \Delta T + 3\alpha_l^2 \Delta T^2 + \alpha_l^3 \Delta T^3$$

D'où :

$$\alpha_l \approx \frac{\alpha_v}{3} \quad \text{et} \quad \alpha_l = \frac{1}{3} \frac{\Delta V}{V_0} \frac{1}{\Delta T}$$

Le coefficient de dilatation thermique linéaire a été calculé pour la zircone à partir de cette relation. Pour les couches $\alpha(\text{O})$ et ex- β , nous avons utilisé les données publiées par BUNNELL et al. (1977). L'évolution de tous les coefficients de dilatation thermique sécants, pour une température de référence de 19°C, utilisés pour le calcul de contraintes est présenté dans la Figure 115 :

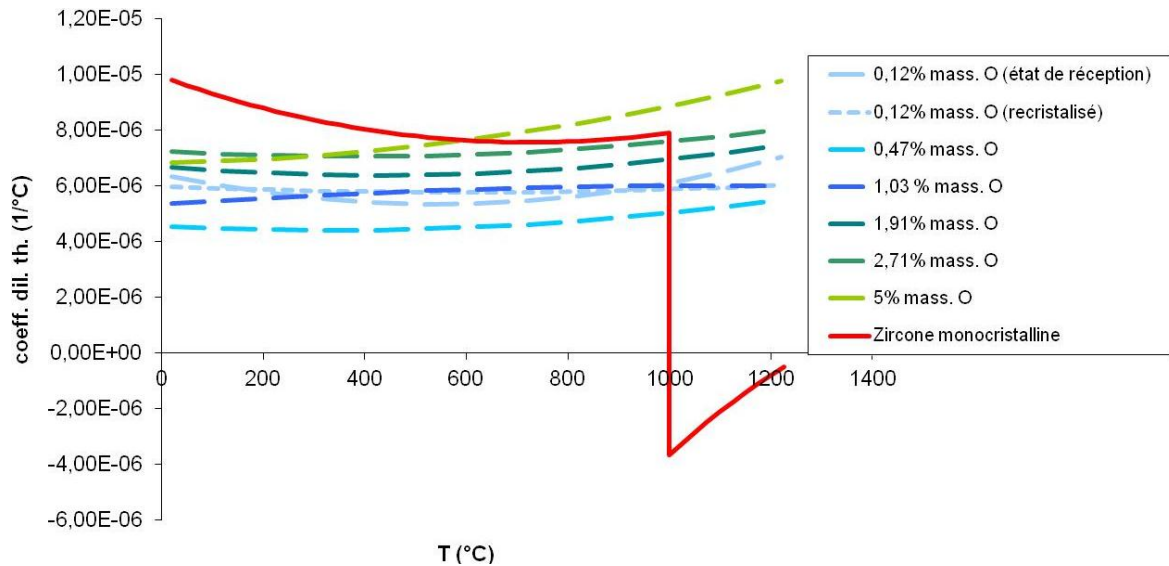


Figure 115 : Evolution des coefficients de dilatation thermique sécants, par teneur en oxygène en fonction de la température, pour une température de référence de 19°C (BUNNELL et al., 1977).

5.3.2. Module d'Young et coefficient de Poisson

Le coefficient de Poisson a été fixé à une valeur de 0,33 pour les trois couches. Les évolutions du module d'Young utilisées pour les couches $\alpha(\text{O})$ et ex- β , correspondent aux données publiées par BUNNELL et al. (1977) :

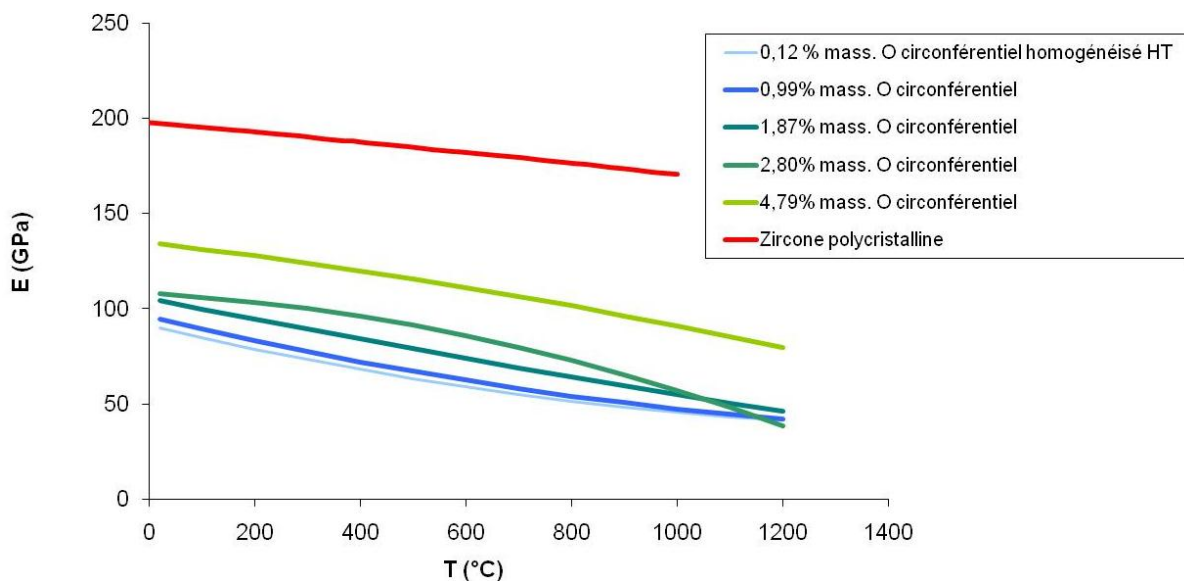


Figure 116 : Evolution du module d'Young par teneur en oxygène en fonction de la température (BUNNELL et al., 1977).

5.4. Calcul analytique et par éléments finis

Pour mettre en place le calcul des contraintes thermiques liées à la trempe, nous avons introduit une discrétisation de la couche $\alpha(O)$ en la divisant systématiquement en 8 sous-couches. Les propriétés de chacune d'entre elles ont été introduites en fonction de la teneur locale en oxygène estimée par microsonde, permettant ainsi de rendre compte du gradient de propriétés au sein de cette couche.

Deux versions du calcul ont été développées :

- Une première analytique, codée à l'aide de MATLAB pour résoudre directement les systèmes d'équations. Cette version prend en compte le module d'Young à température ambiante, et le coefficient de dilatation thermique à la température à partir de laquelle se fait la trempe, pour les trois couches.
- Une deuxième par éléments finis, implémentée sous CAST3M 2009, qui permet de mettre à jour les propriétés du matériau (module d'Young et coefficient de dilatation thermique), qui varient en fonction de la température, au cours du refroidissement.

5.5. Prise en compte d'une relaxation des contraintes à haute température

Dans la mesure où une relaxation de contraintes peut s'opérer à haute température, en début de refroidissement, nous avons considéré deux hypothèses concernant la prise en compte ou non de cette relaxation. Nous avons utilisé la définition de la plage de températures pour introduire les deux hypothèses :

- Dans le cas où on ne prend pas en compte une accommodation des contraintes, on suppose que la dilatation thermique s'opère tout au long du refroidissement, si bien que la plage de températures du calcul correspond à la plage de températures du refroidissement.
- Lorsqu'on introduit une hypothèse supposant une accommodation de contraintes à haute température, on suppose que, au cours du refroidissement, les contraintes dues à la dilatation thermique sont accommodées dans un premier temps, et jusqu'à une température « initiale effective », à partir de laquelle on calcule les contraintes. Pour cette deuxième hypothèse, la plage de températures du calcul est alors définie à partir de la température « initiale effective », et jusqu'à la température ambiante. La température « initiale effective », qui fait référence à la température au refroidissement à laquelle les accommodations ne sont plus permises, a été fixée à 800°C pour notre calcul. A cette température, la transformation de phase β - α du zirconium est presque finie (même à des fortes teneurs en oxygène), et la transformation tétragonale-monoclinique de la zircone, qui entraîne des fortes dilatations volumiques, est terminée.

5.6. Résultats des simulations

Nous avons simulé les contraintes thermiques sur une gaine oxydée 520s à 1200°C (10% ECR) à l'aide de la version analytique du calcul. Nous avons utilisé d'abord le calcul pour une géométrie tube sous l'hypothèse d'absence d'accommodation de contraintes. Nous avons fait varier le nombre de sous-couches utilisées pour la discrétisation de la couche $\alpha(O)$ (pour la prise en compte du gradient des propriétés), puis nous avons tracé les profils de contraintes circonférentielles dans l'épaisseur de la gaine (Figure 117). Les profils sont tracés du bord extérieur de la gaine (zircone) à gauche, au bord intérieur (ex- β) à droite.

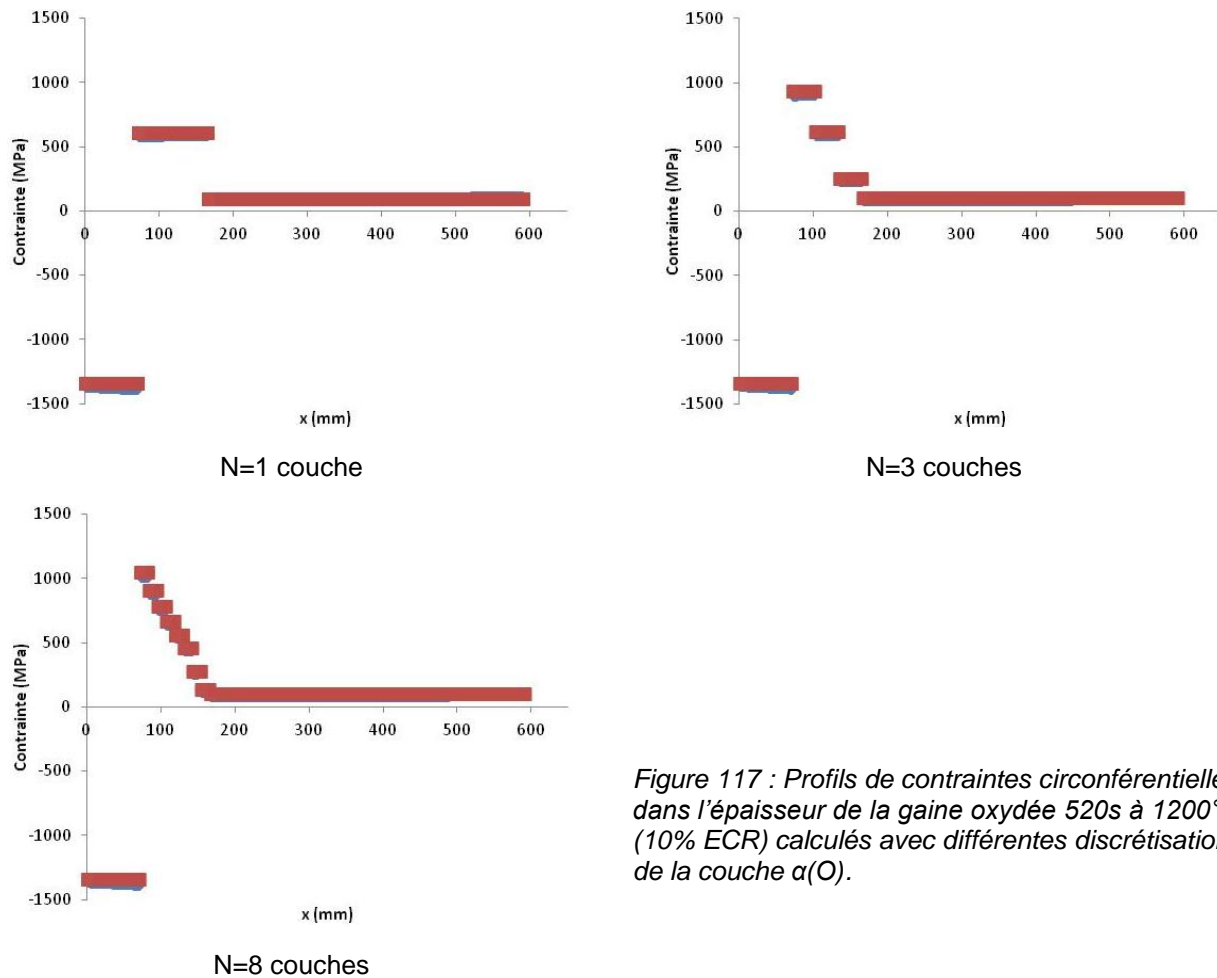


Figure 117 : Profils de contraintes circonférentielles dans l'épaisseur de la gaine oxydée 520s à 1200°C (10% ECR) calculés avec différentes discrétisations de la couche $\alpha(O)$.

Nous avons retenu suite à ces calculs que la discrétisation de la couche $\alpha(O)$ doit être faite avec 8 sous-couches.

Ensuite, nous avons comparé les contraintes radiale, circonférentielle et axiale (Figure 118).

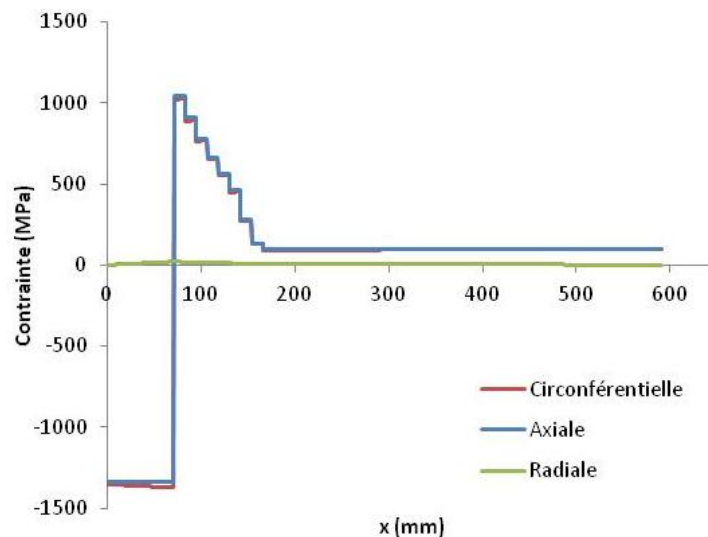


Figure 118 : Profils de contrainte radiale, circonférentielle et axiale dans l'épaisseur de la gaine oxydée 520s à 1200°C (10% ECR).

Les profils de contraintes axiale et circonférentielle se superposent alors que la contrainte radiale reste proche de zéro.

Nous avons comparé également les profils calculés avec deux géométries (plaque et tube), en gardant les mêmes paramètres de calcul (Figure 119).

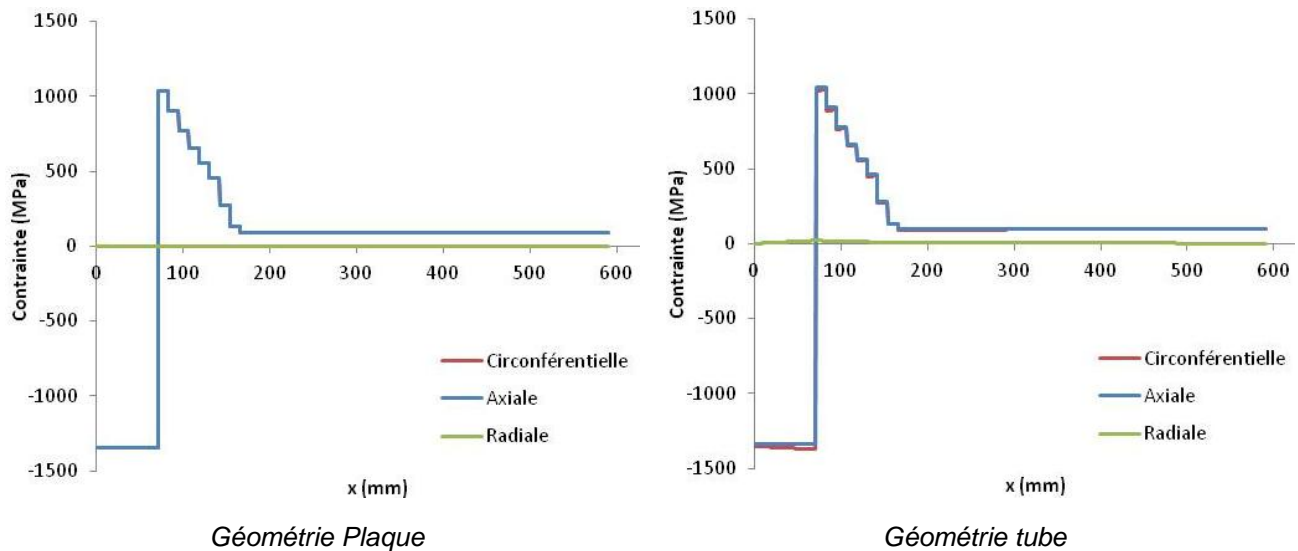


Figure 119 : Profils de contrainte radiale, circonférentielle et axiale dans l'épaisseur de la gaine oxydée 520s à 1200°C (10% ECR), calculés pour deux géométries différentes.

Nous avons conclu que le calcul pour une géométrie plaque est une bonne approximation du calcul pour une géométrie tube.

Finalement nous avons testé les deux hypothèses de calcul : avec et sans accommodation de contraintes à haute température. Les profils de contrainte ainsi calculés sont présentés en Figure 120.

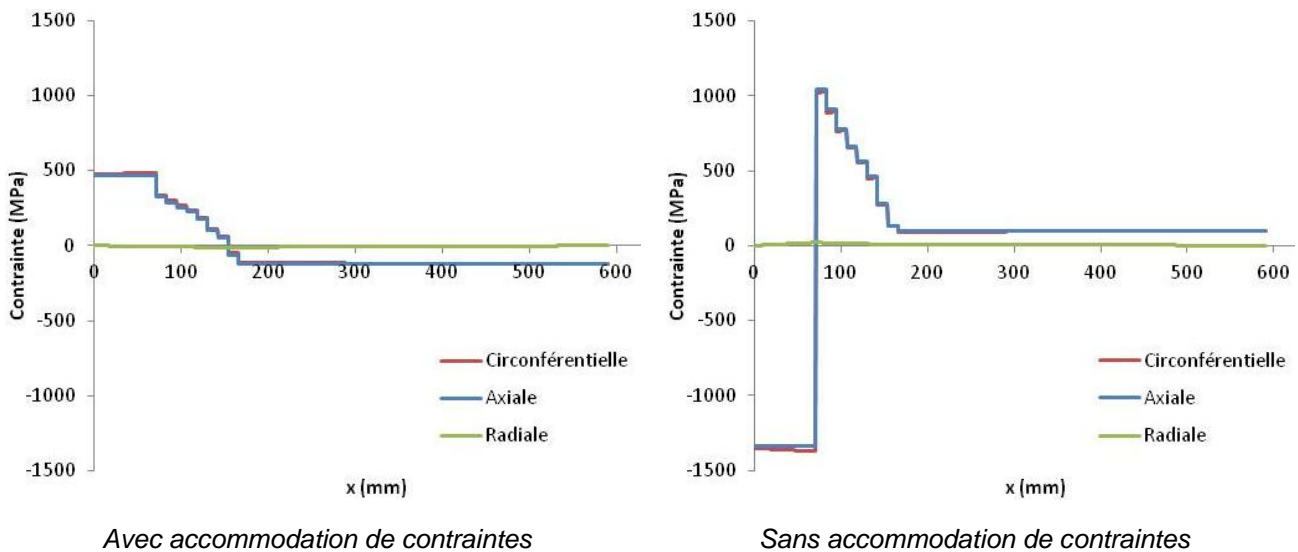


Figure 120 : Profils de contrainte radiale, circonférentielle et axiale dans l'épaisseur de la gaine oxydée 520s à 1200°C (10% ECR), calculés avec et sans accommodation de contraintes à haute température.

Les contraintes calculées dans la phase $\alpha(O)$ sont (au moins localement) supérieures à la contrainte à rupture de l'ordre de 200MPa évaluée par STERN (2007), et cela, quelle que soit l'hypothèse faite sur l'accommodation des contraintes à haute température.

Annexe 6 Essais de compression d'anneaux

Nous présentons dans cette annexe la totalité des courbes de force déplacement obtenues par essai de compression d'anneaux sur des anneaux usinés à partir d'une même éprouvette oxydée et trempée. Le Tableau 12 résume les conditions de préparation des éprouvettes en Zy-4 (a.), les niveaux d'oxydation atteints (b.), et les épaisseurs des couches estimées qui correspondent à chaque oxydation (c.).

a. Conditions d'oxydation			b. Niveau d'oxydation post-essai		c. Epaisseur des couches estimées			
Température d'oxydation (°C)	Temps d'oxydation (s)	ECR visé (%)	GDM obtenu (mg/cm²)	ECR obtenu (%)	Epaisseur Zircone (µm)	Epaisseur Alpha(O) (µm)	Epaisseur Biphasee (µm)	Epaisseur Ex-β (µm)
1000	50	t. β	0,93	0,7	6,5	8,5	0	560
1100	467	6	8,16	6,5	42	39	21	476
			8,14	6,3				
	1349	10	13,09	10,3	74	78	22	420
1200	520	10	13,05	10,3	71	85	20	415
	1492	17	21,03	16,6	113	140	213	135

Tableau 12 : Conditions de préparation des échantillons en Zy-4, niveaux d'oxydation atteints, et épaisseurs moyennes des couches mesurées. ECR obtenu évalué à partir du gain de masse.

L'éprouvette « traitée β » a été élaborée afin de tester les limites du modèle EF développé dans ce travail pour proposer un scénario du RCT sur gaine oxydée en conditions APRP.

Par la suite, chaque figure présente les courbes de force déplacement qui correspondent à une éprouvette oxydée, et comprend :

- Les essais de compression d'anneaux aboutis sur gaine intègre (jusqu'à la rupture de l'éprouvette).
- Les essais de compression d'anneaux interrompus sur gaine intègre.
- Les essais de compression d'anneaux réalisés sur des tronçons de gaine sablée.

6.1. Gaine en Zy-4 oxydée 50s à 1000°C (traitée β)

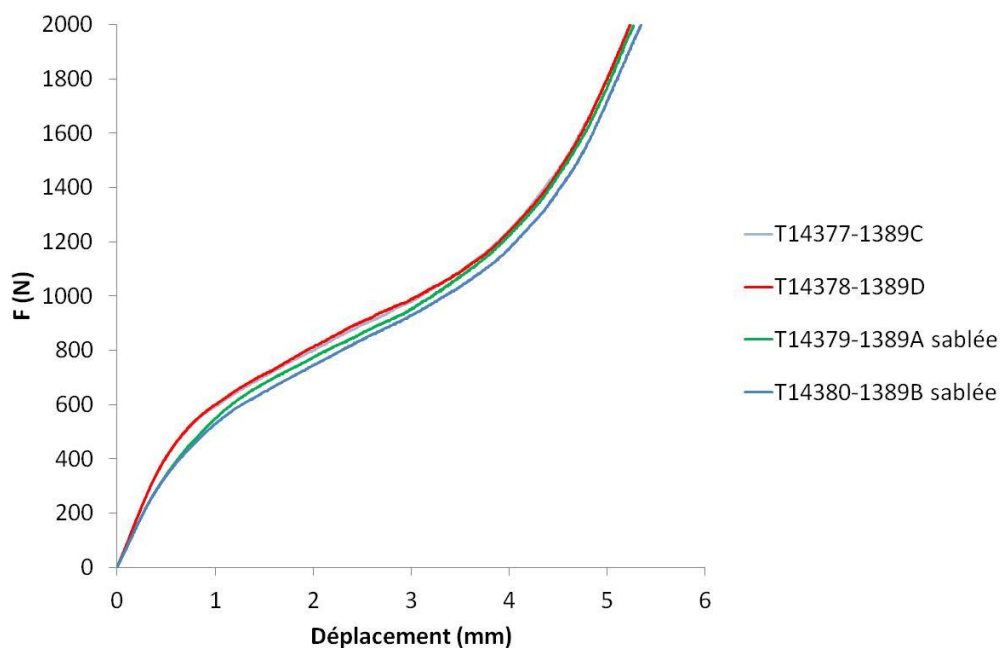


Figure 121 : Courbes de force-déplacement des essais de compression d'anneaux réalisés sur gaine en Zy-4 oxydée 50s à 1000°C (traitée β).

6.2. Gaine en Zy-4 oxydée 467s à 1100°C (6,5% ECR)

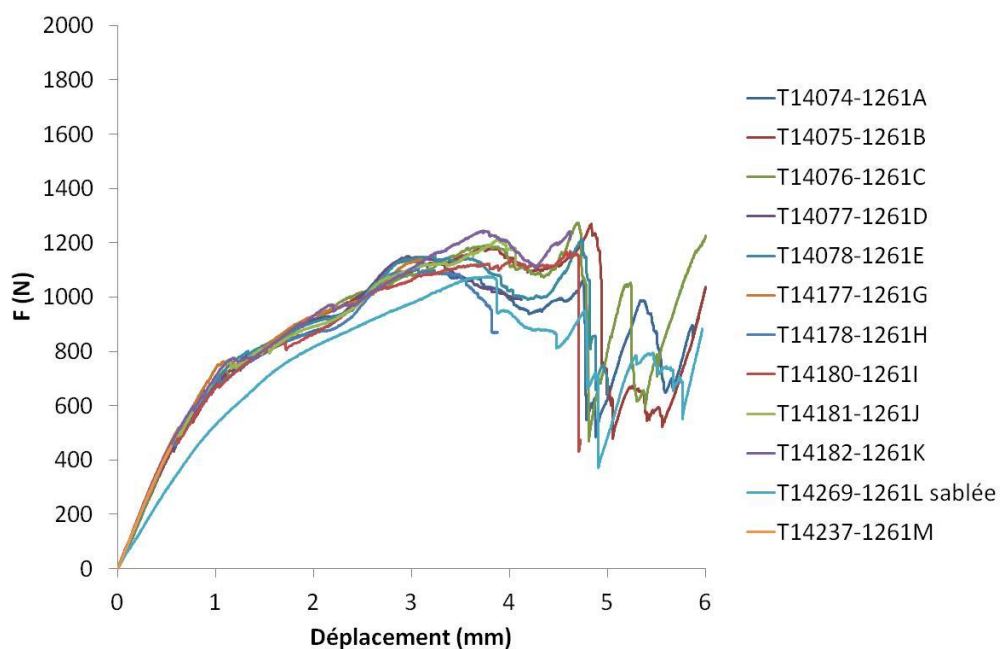


Figure 122 : Courbes de force-déplacement des essais de compression d'anneaux réalisés sur gaine en Zy-4 oxydée 467s à 1100°C (6,5% ECR).

6.3. Gaine en Zy-4 oxydée 467s à 1100°C (6,3% ECR)

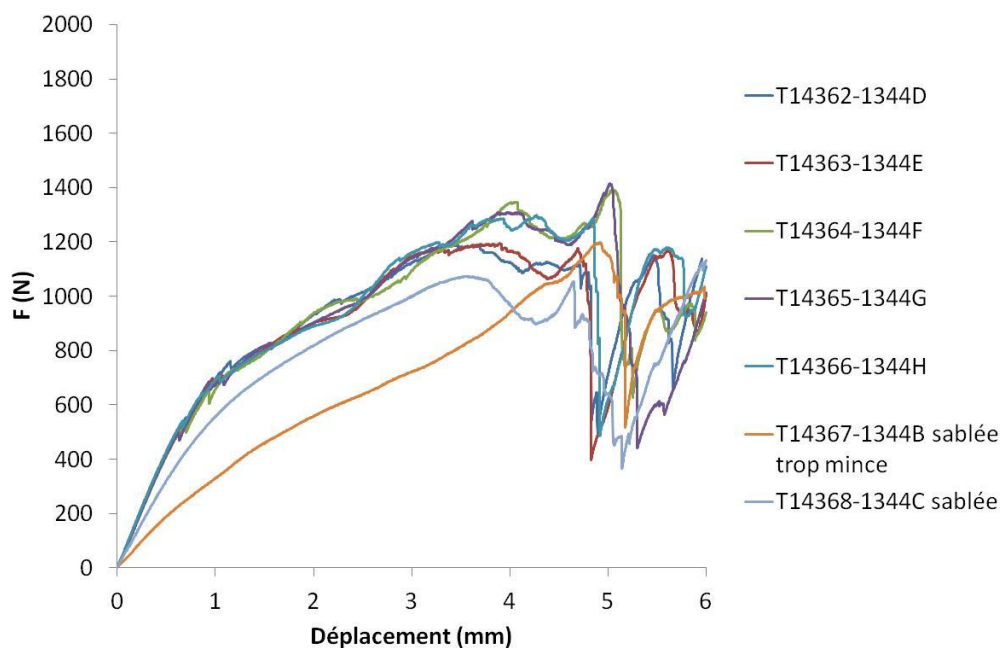


Figure 123 : Courbes de force-déplacement des essais de compression d'anneaux réalisés sur gaine en Zy-4 oxydée 467s à 1100°C (6,3% ECR).

6.4. Gaine en Zy-4 oxydée 1349s à 1100°C (10,3% ECR)

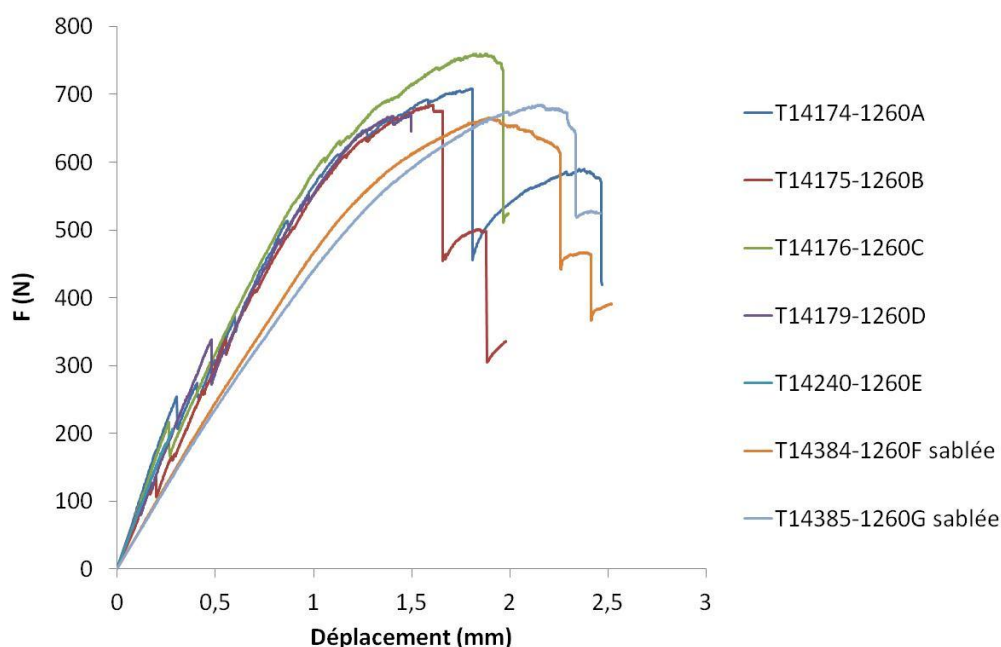


Figure 124 : Courbes de force-déplacement des essais de compression d'anneaux réalisés sur gaine en Zy-4 oxydée 1349s à 1100°C (10,3% ECR).

6.5. Gaine en Zy-4 oxydée 520s à 1200°C (10,3% ECR)

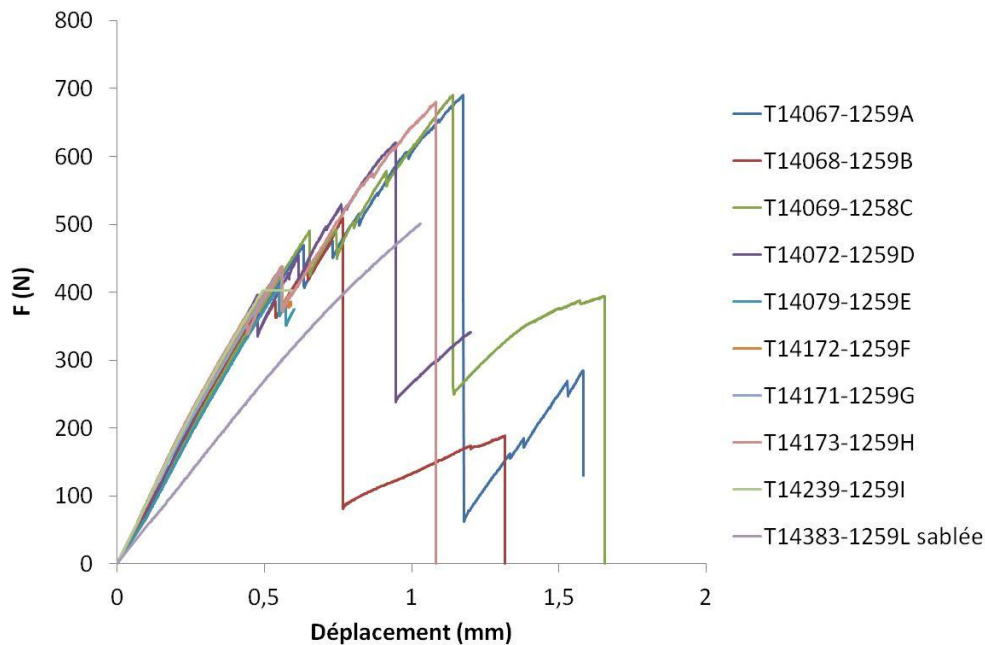


Figure 125 : Courbes de force-déplacement des essais de compression d'anneaux réalisés sur gaine en Zy-4 oxydée 520s à 1200°C (10,3% ECR).

6.6. Gaine en Zy-4 oxydée 1492s à 1200°C (16,5% ECR)

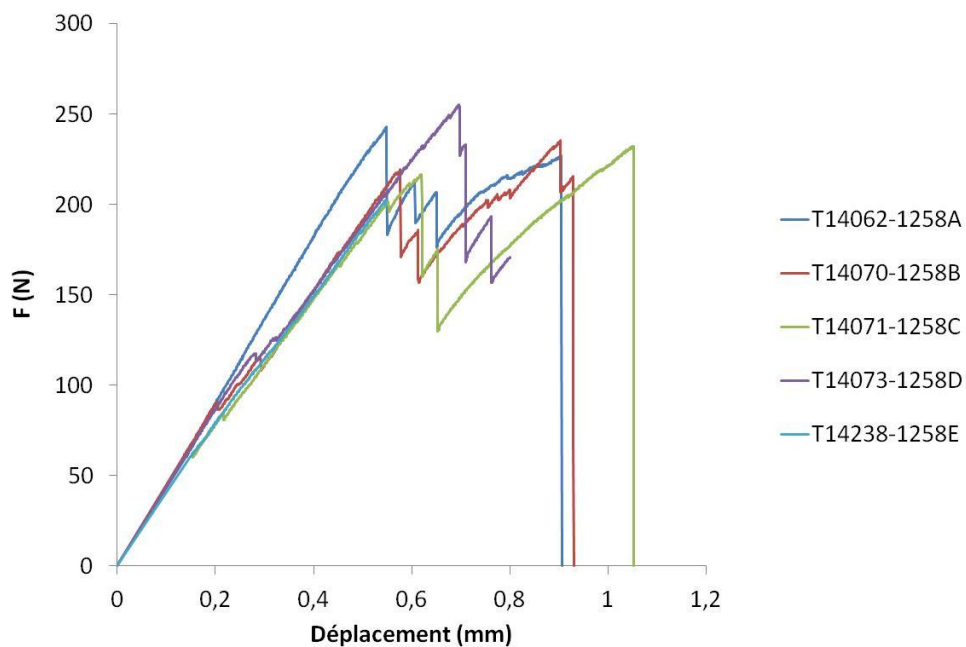


Figure 126 : Courbes de force-déplacement des essais de compression d'anneaux réalisés sur gaine en Zy-4 oxydée 1492s à 1200°C (16,5% ECR).

Annexe 7 Simulation EF des RCT

7.1. Etude de sensibilité aux paramètres de calcul

7.1.1. Sensibilité au maillage

Des simulations ont été menées avec quatre maillages différents sur le cas des gaines oxydées 467s à 1100°C (6% ECR), en utilisant la géométrie 1 (la couche de zircone est supposée intègre). Les maillages sont décrits dans le Tableau 13 :

	Eléments par couche			Eléments dans la direction circonférentielle	Total maillage de la gaine
	Zircone	Alpha(O)	Ex-β		
Simulation 1	1	1	3	150	750
Simulation 2	2	3	5	180	1800
Simulation 3	2	3	8	210	2730
Simulation 4	2	3	8	240	3120

Tableau 13 : Nombre d'éléments par couche pour chacun des maillages simulés.

La Figure 127 présente les courbes de force et de contrainte maximale en fonction du déplacement, pour les quatre simulations :

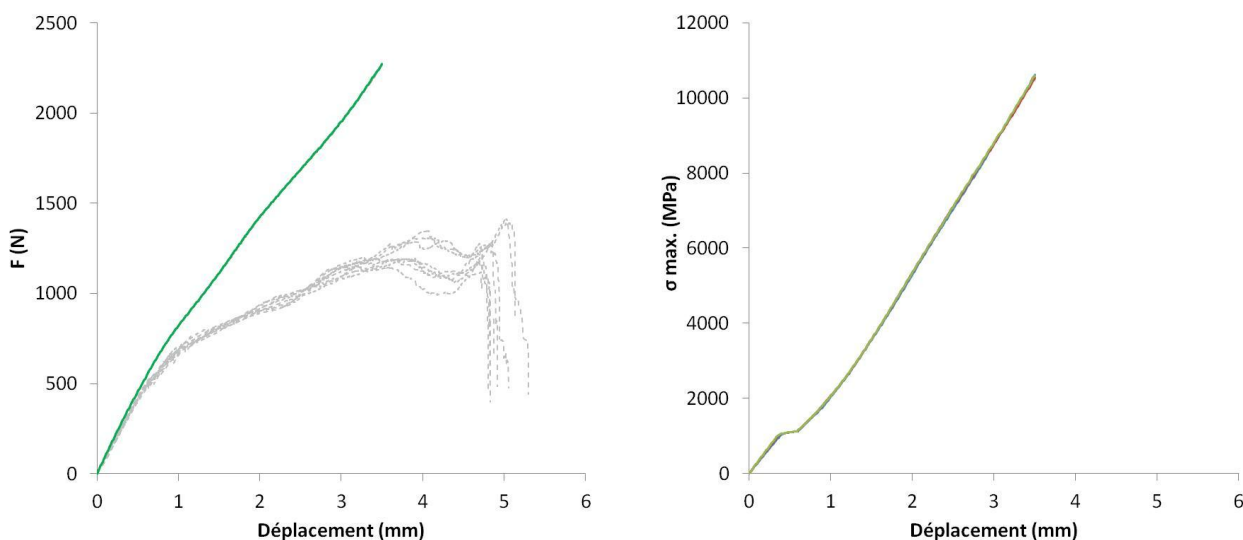


Figure 127 : Courbes de force (à gauche) et de la contrainte maximale (à droite) en fonction du déplacement, pour les quatre maillages.

La courbe de force déplacement et la courbe de la contrainte maximale sont quasiment les mêmes quel que soit le maillage utilisé. La Figure 128 présente les courbes de déformation maximale en fonction du déplacement, pour les quatre simulations :

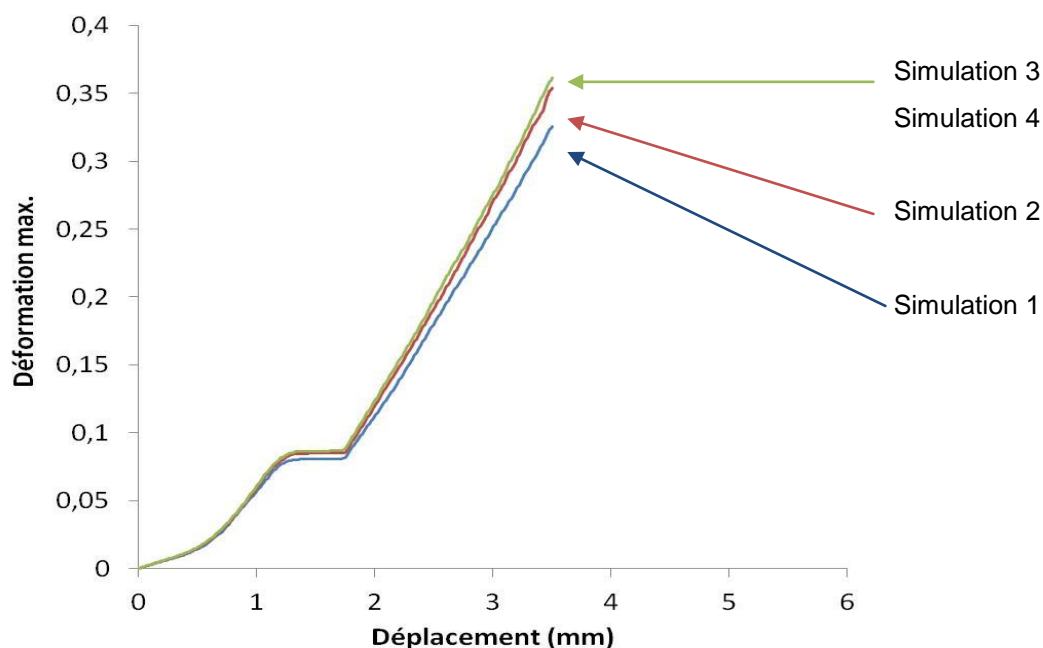


Figure 128 : Courbe de déformation maximale en fonction du déplacement, pour les quatre maillages.

La courbe de déformation totale maximale, évolue légèrement avec le maillage. Pour mettre en place le scénario de rupture proposé, nous avons alors utilisé 8 éléments dans l'épaisseur de la couche ex- β , 3 dans la couche $\alpha(O)$ et 2 pour la zircone, et 180 éléments disposés selon la direction circonférentielle du demi-anneau. Pour certains cas de simulation, nous avons utilisé 210 éléments disposés selon la direction circonférentielle du demi-anneau pour obtenir une meilleure précision. C'est le cas des simulations des RCT sur gaines avec un comportement global très ductile, qui présentent une déformation importante.

Nous avons également étudié la sensibilité au maillage d'une simulation pour le même cas (467s à 1100°C - 6% ECR) mais sur une gaine sablée (monocouche ex- β). Les maillages sont décrits dans le Tableau 14 :

	Eléments dans l'épaisseur de couche Ex- β	Eléments dans la direction circonférentielle	Total maillage de la gaine
Simulation 1	3	150	450
Simulation 2	5	210	1050
Simulation 3	8	240	1920

Tableau 14 : Nombre d'éléments pour chacun des maillages simulés (gaine sablée).

La Figure 129 présente les courbes de déformation maximale en fonction du déplacement, pour les trois simulations :

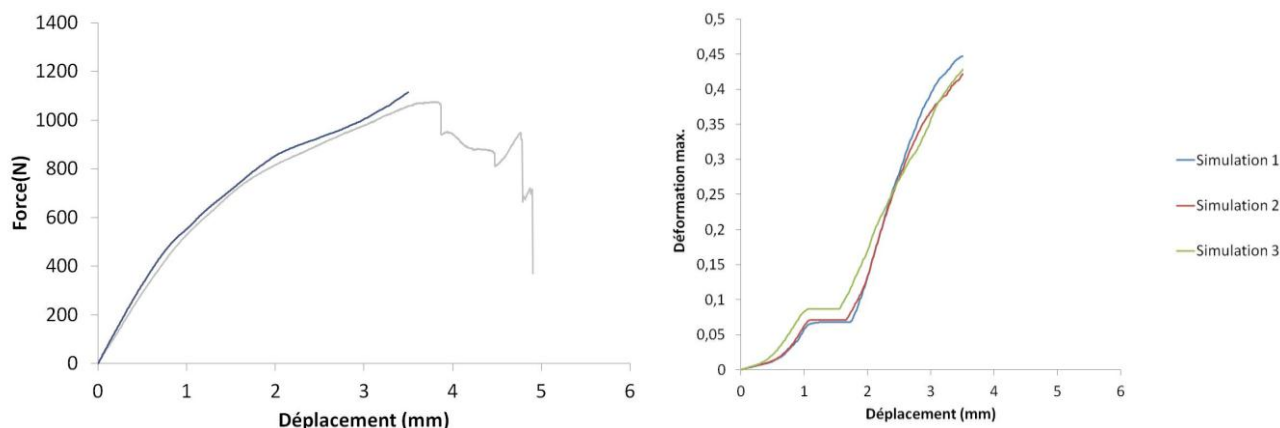


Figure 129 : Courbe de force déplacement simulée et expérimentale et courbe de déformation maximale en fonction du déplacement, pour les trois maillages (gaine sablée).

On observe que pour la simulation d'un RCT sur une gaine sablée, qui présente des déformations locales plus importantes qu'une gaine non-sablée, la dispersion de la courbe de déformation maximale en fonction du déplacement, lorsqu'on modifie le maillage, reste peu significative.

7.1.2. Sensibilité au module d'Young des couches fragiles

Nous avons étudié la sensibilité du modèle EF au module d'Young des couches fragiles. La Figure 130 présente un exemple de la sensibilité au module d'Young de la zircone, qui a été ajusté au cours de cette étude. Pour réaliser les simulations qu'on y illustre, nous avons utilisé la géométrie 1 (la couche de zircone est supposée intègre) du premier stade d'endommagement des gaines oxydées 520s à 1200°C (10% ECR), et nous avons fait varier seulement le module d'Young de la zircone.

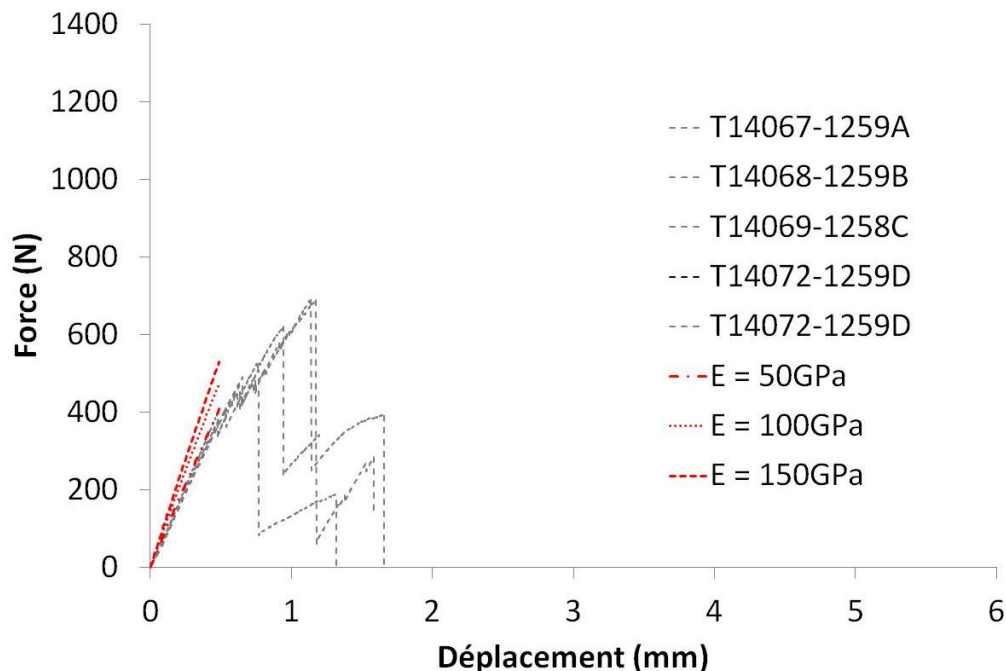


Figure 130 : Simulations avec la géométrie 1 du premier stade d'endommagement des gaines oxydées 520s à 1200°C (10% ECR), sollicitées par RCT, avec 3 valeurs du module d'Young de la zircone.

Pour mettre en place le scénario de rupture proposé, nous avons alors utilisé un module d'Young de la couche de zircone de 100MPa.

La Figure 131 présente un exemple de la sensibilité au module d'Young de la phase $\alpha(O)$. Pour réaliser les simulations qu'on y illustre, nous avons utilisé la géométrie 2 (la couche de zircone est

supposée non contributive aux pôles) du deuxième stade d'endommagement des gaines oxydées 520s à 1200°C (10% ECR). Nous avons fait varier le module d'Young de la phase $\alpha(O)$ à l'aide d'un coefficient multiplicatif qu'on a fait varier.

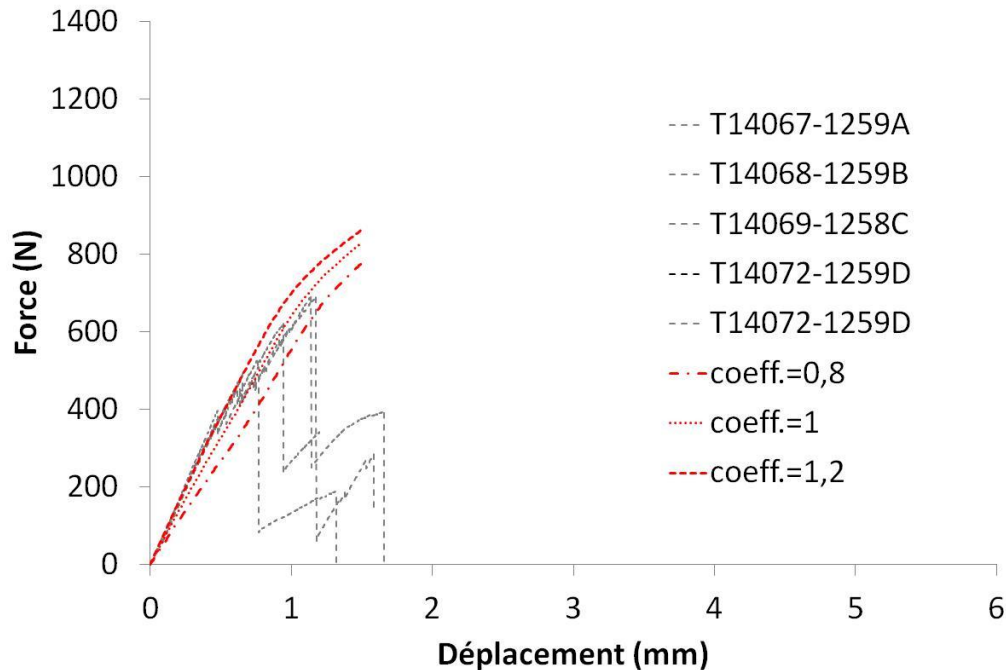


Figure 131 : Simulations avec la géométrie 3 du troisième stade d'endommagement, des gaines oxydées 520s à 1200°C (10% ECR), sollicitées par RCT, avec le module d'Young de la phase $\alpha(O)$ modifié à l'aide de 3 coefficients multiplicatifs.

Pour mettre en place le scénario de rupture, nous avons utilisé l'évolution proposée par BUNNELL et al. (1977) pour décrire le module d'Young de la couche $\alpha(O)$, c'est-à-dire, nous avons utilisée un coefficient de 1.

7.1.3. Sensibilité aux angles de transition de la dépendance angulaire de la couche $\alpha(O)$

La fonction angulaire qui aide à définir le module d'Young de la couche $\alpha(O)$ a été définie de la façon suivante :

Pôles	$f(\alpha) = 1$	si	$\begin{cases} \alpha_2 + 10^\circ < \alpha < 90^\circ \\ -90^\circ < \alpha < \alpha_1 - 10^\circ \end{cases}$
Equateur	$f(\alpha) = 10^{-6}$	si	$\alpha_1 < \alpha < \alpha_2$
Zones de transition	interpolation linéaire	si	$\begin{cases} \alpha_2 < \alpha < \alpha_2 + 10^\circ \\ \alpha_1 - 10^\circ < \alpha < \alpha_1 \end{cases}$

La Figure 132 présente un exemple de la sensibilité aux angles de transition de la dépendance angulaire de la couche $\alpha(O)$ (α_1 et α_2). Pour réaliser les simulations qu'on y illustre, nous avons utilisé la géométrie 3 (la couche de zircone est supposée non contributive) du deuxième stade d'endommagement des gaines oxydées 467s à 1100°C (6% ECR). Nous avons fait varier les angles de transition pour tracer les courbes de force déplacement simulées.

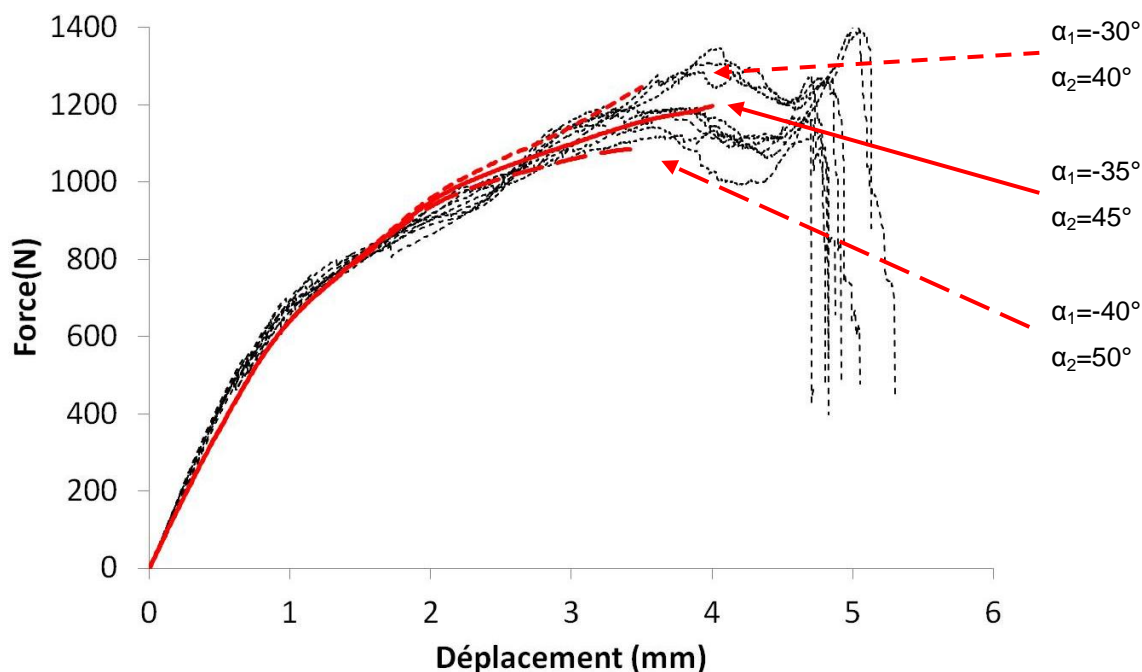
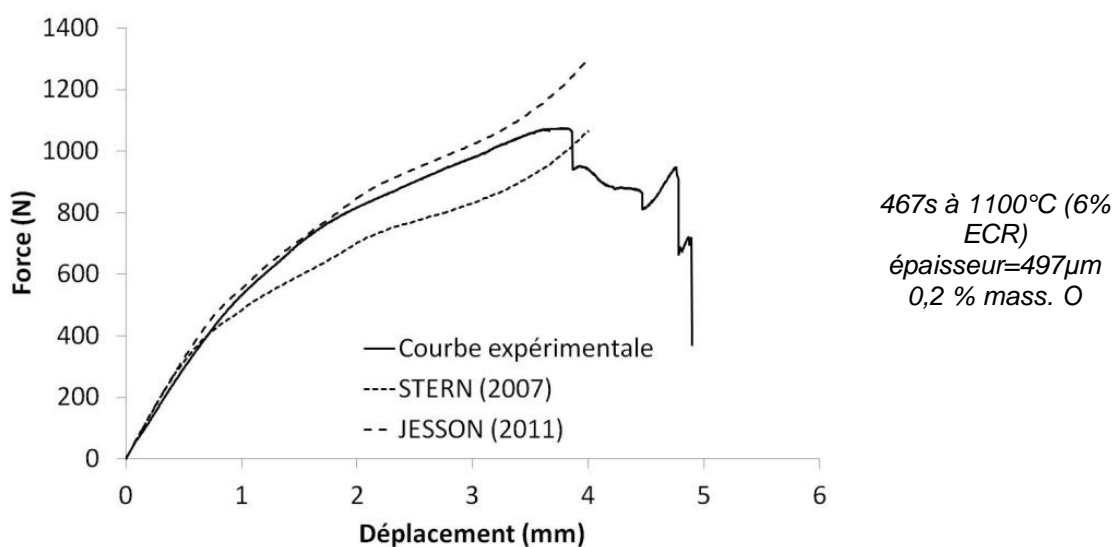


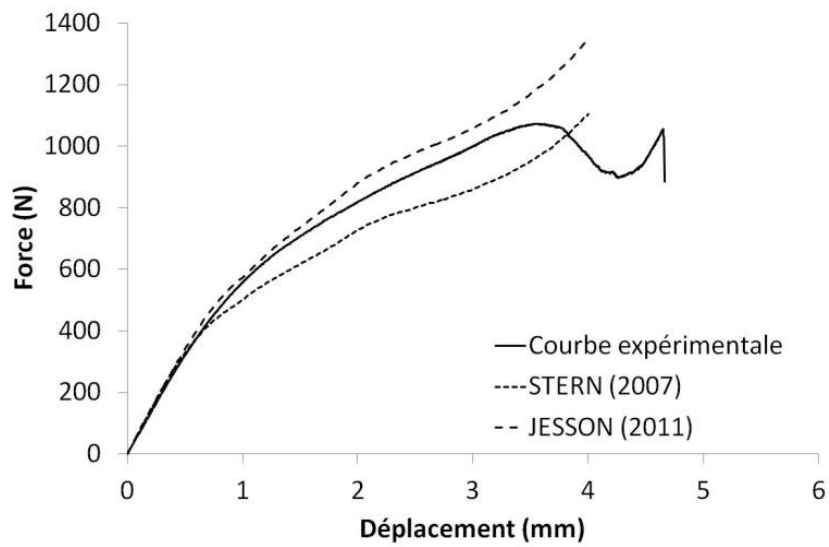
Figure 132 : Simulations avec la géométrie 3 du troisième stade d'endommagement des gaines oxydées 467s à 1100°C (6% ECR), sollicitées par RCT, avec trois angles de transition différents.

Pour mettre en place le scénario de rupture, nous avons utilisé les angles $\alpha_1 = -35^\circ$ et $\alpha_2 = 45^\circ$, mesurés à partir de l'équateur de la gaine, pour définir la dépendance angulaire des propriétés mécaniques de la couche $\alpha(O)$.

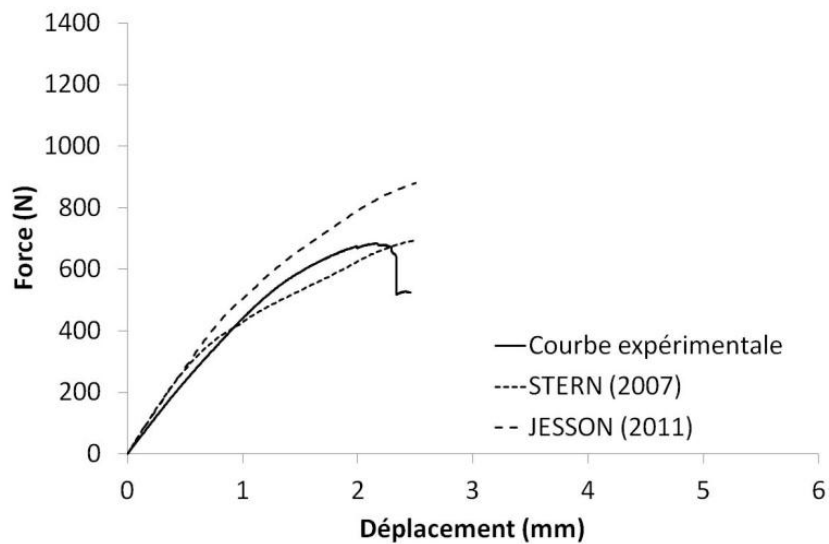
7.2. Simulations des RCT sur gaines sablées

La Figure 133 présente les courbes de force déplacement obtenues par des simulations des RCT sur des gaines oxydées en conditions APRP et sablées, comparées aux courbes expérimentales. Pour chaque essai, deux simulations ont été réalisées, avec les deux lois de comportement plastique de la couche ex- β (STERN, 2007 ; et JESSON, 2011) respectivement. Les simulations ont été réalisées comme décrit au paragraphe 4.3.1.

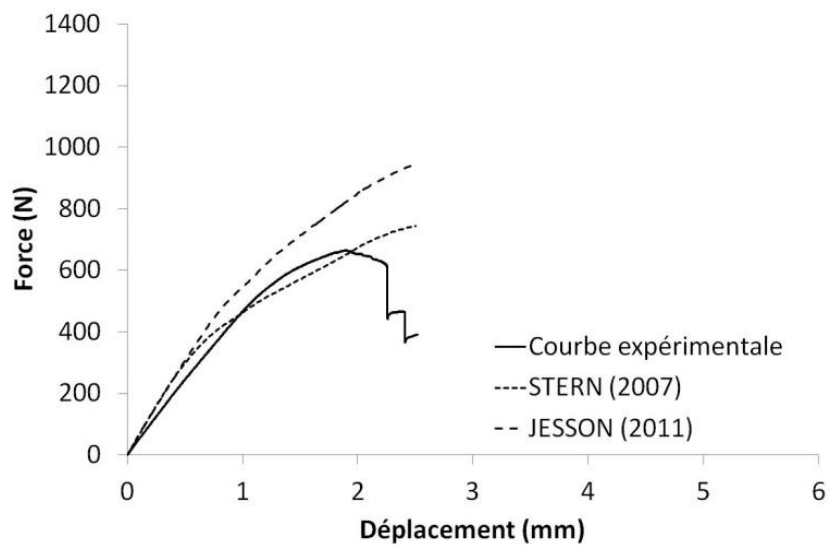




467s à 1100°C (6%
ECR)
épaisseur=506 μ m
0,2 % mass. O



1349s à 1100°C
(10% ECR)
épaisseur=466 μ m
0,275 % mass. O



1349s à 1100°C
(10% ECR)
épaisseur=483 μ m
0,275 % mass. O

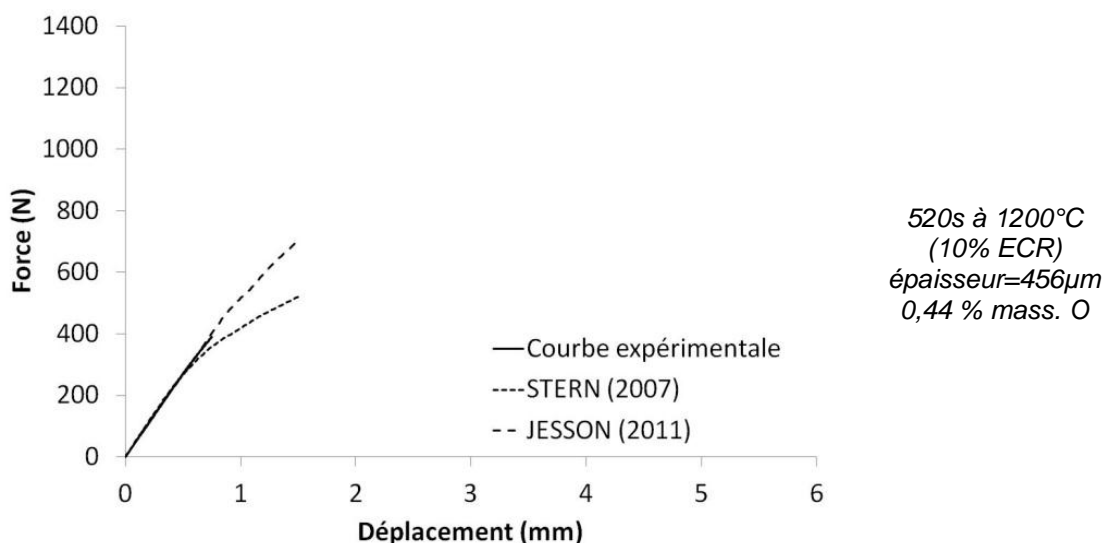


Figure 133 : Courbes de force déplacement expérimentales et simulées pour des gaines préparées dans les conditions correspondant à nos trois cas d'étude, puis sablées, testées par RCT. La teneur moyenne en oxygène de la couche ex- β est indiquée.

De la comparaison des courbes de force déplacement des RCT sur gaines sablées expérimentales et simulées, on peut conclure que la loi proposée par JESSON (2011) décrit correctement le comportement plastique de la couche ex- β , ce qui nous amène à supposer que le sablage n'induit pas un durcissement supplémentaire sur cette couche.

7.3. Limites du modèle

Afin de tester les limites de notre démarche pour établir le scénario de rupture de la gaine oxydée en conditions APRP sollicitée par RCT, et du calcul par éléments finis correspondant, nous avons développé deux axes complémentaires à notre étude:

- Nous avons évalué la capacité de la loi de comportement proposée par JESSON (2011) pour décrire le comportement de la phase ex- β chargée en hydrogène par la réalisation d'une simulation préliminaire prenant en compte l'effet de l'hydrogène.
- Nous avons évalué la capacité du modèle à reproduire la réponse mécanique des gaines peu oxydées (traitées β , par exemple) et très ductiles, et des gaines fortement oxydées (ECR=17%), et très fragiles par conséquence.

La prise en compte de l'effet de l'hydrogène dans notre modèle a été étudiée au paragraphe 4.6. La démarche concernant la capacité de notre modèle pour reproduire la réponse mécanique des gaines peu ou fortement oxydées est présentée par la suite.

7.3.1. Simulation d'un RCT sur gaine « traitée β » et sablée

La Figure 134 présente la courbe de force déplacement obtenue par une simulation d'un RCT réalisé sur une gaine traitée β (oxydée 50s à 1000°C, à 0,7% ECR) et sablée, comparée aux courbes expérimentales. Les simulations ont été réalisées comme décrit au paragraphe 4.3.1, avec la loi de comportement plastique de la couche ex- β proposée par JESSON (2011).

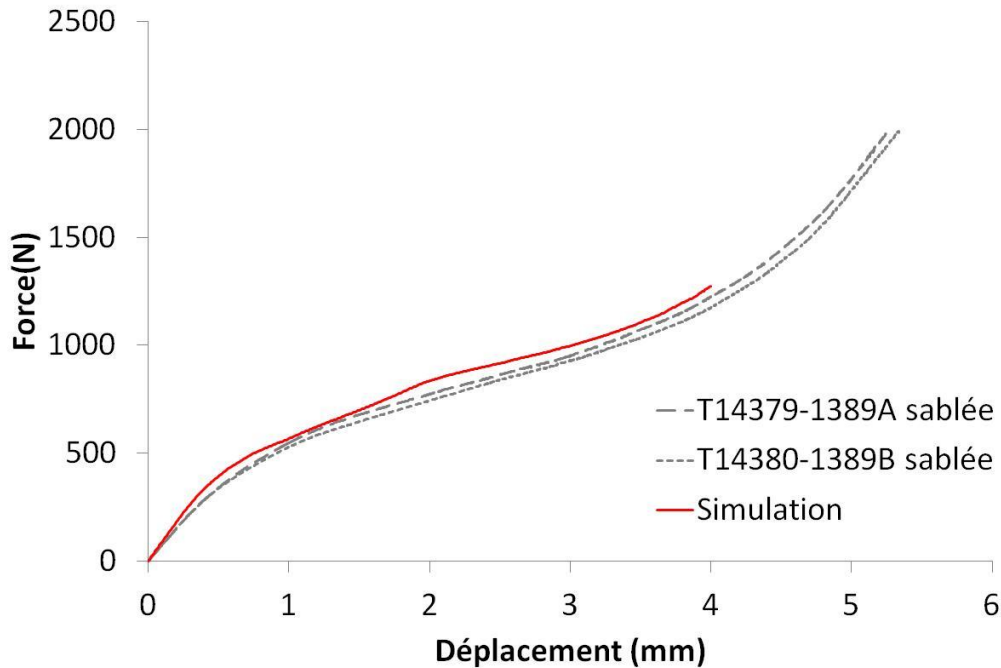


Figure 134 : Courbes expérimentales et courbe simulée pour des RCT sur gaines oxydées 50s à 1000°C (0,7% ECR) et sablées, testées par RCT. La teneur moyenne en oxygène de la couche ex- β est de 0,14% mass. O, et l'épaisseur de simulation de la gaine est de 560 μm .

La loi de comportement proposée par JESSON (2011) décrit correctement le comportement de la couche ex- β de la gaine pour des cas très peu oxydés (environ 0,14% mass. O).

7.3.2. Simulation d'un RCT sur gaine oxydée à 17% ECR

La Figure 135 présente la courbe de force déplacement obtenue par une simulation d'un RCT sur une gaine oxydée 1492s à 1200°C (17% ECR), comparée aux courbes expérimentales. La simulation a été réalisée avec la géométrie 3 (la couche de zircone est géométriquement absente car elle n'est plus contributive) du scénario de rupture proposé.

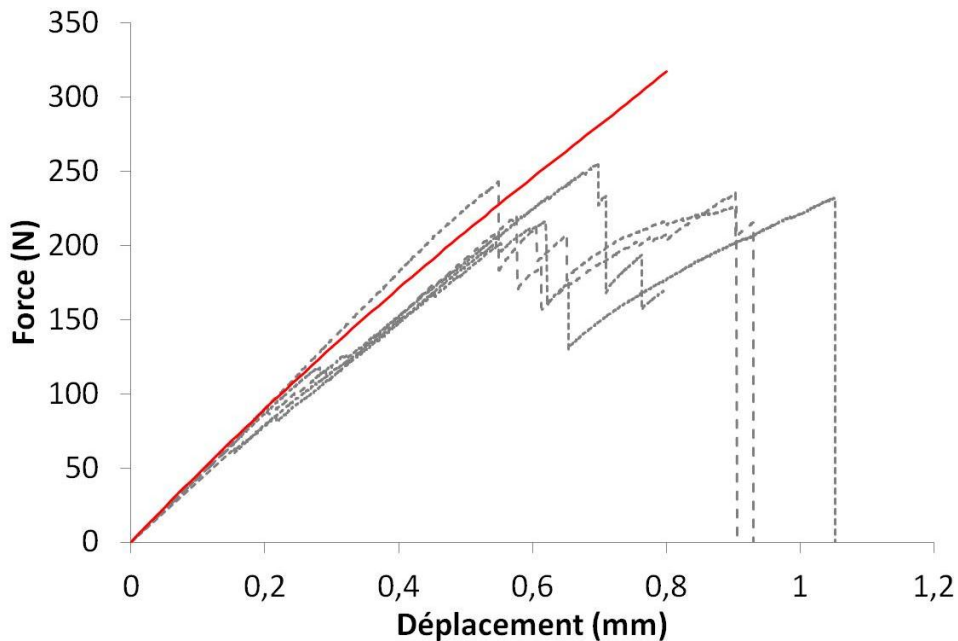
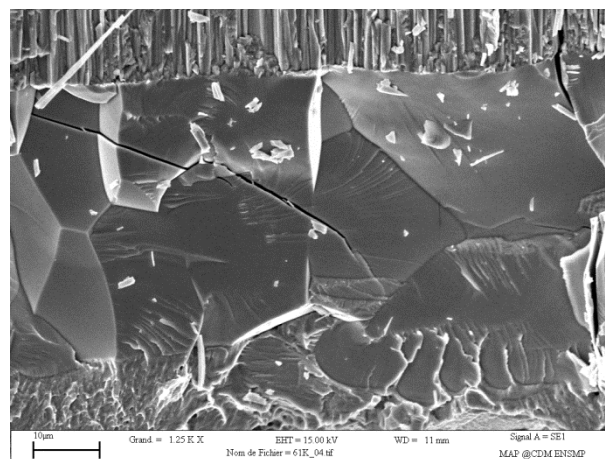
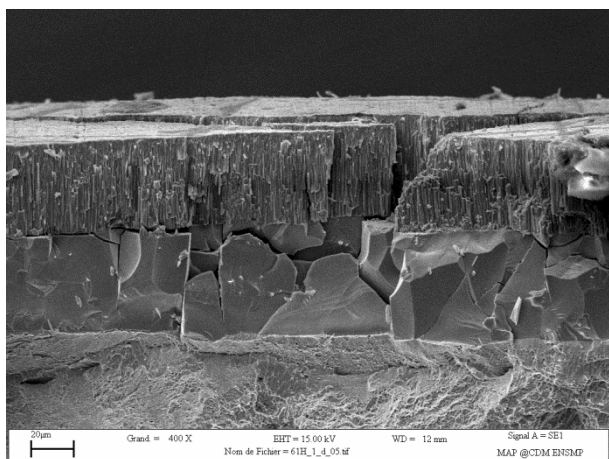
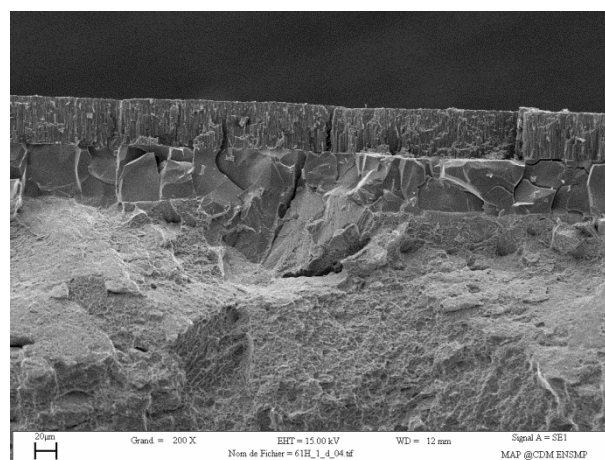
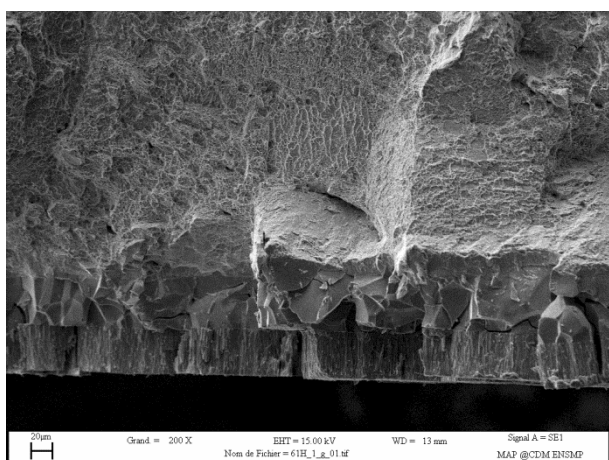
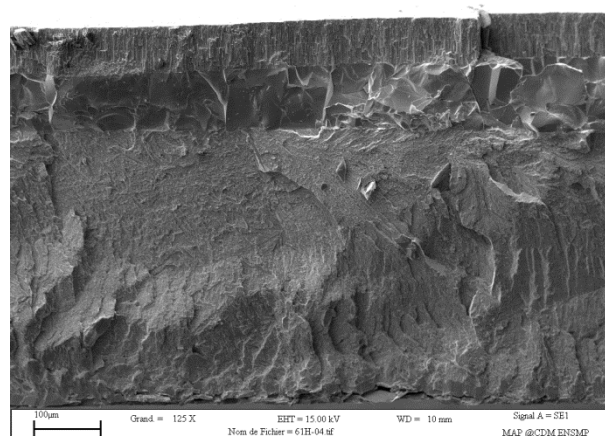
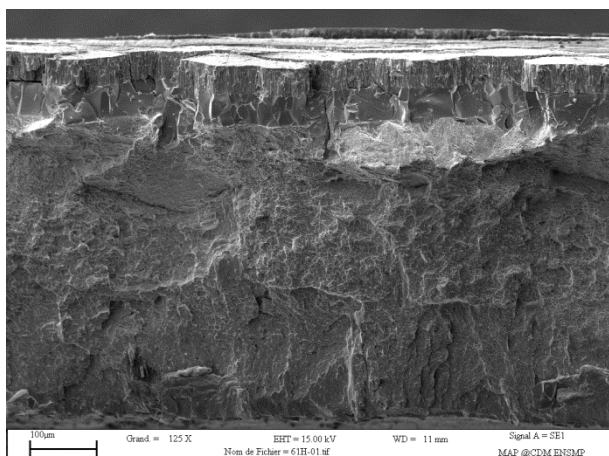


Figure 135 : Courbes de force déplacement expérimentales et simulée (avec la géométrie 2 du scénario de rupture) pour une gaine oxydée 1492s à 1200°C (17% ECR).

Malgré sa fragilité, une simulation du RCT peut être utilisée pour estimer (de façon approximative) la réponse mécanique globale des gaines très oxydées (1492s à 1200°C- 17% ECR) si on considère que la couche de zircone est suffisamment endommagée pour être supposée géométriquement absente.

Annexe 8 Fractographies post-RCT sur gaines en Zy-4 oxydé

8.1. Gaines en Zy-4 oxydées 467s à 1100°C (6% ECR)



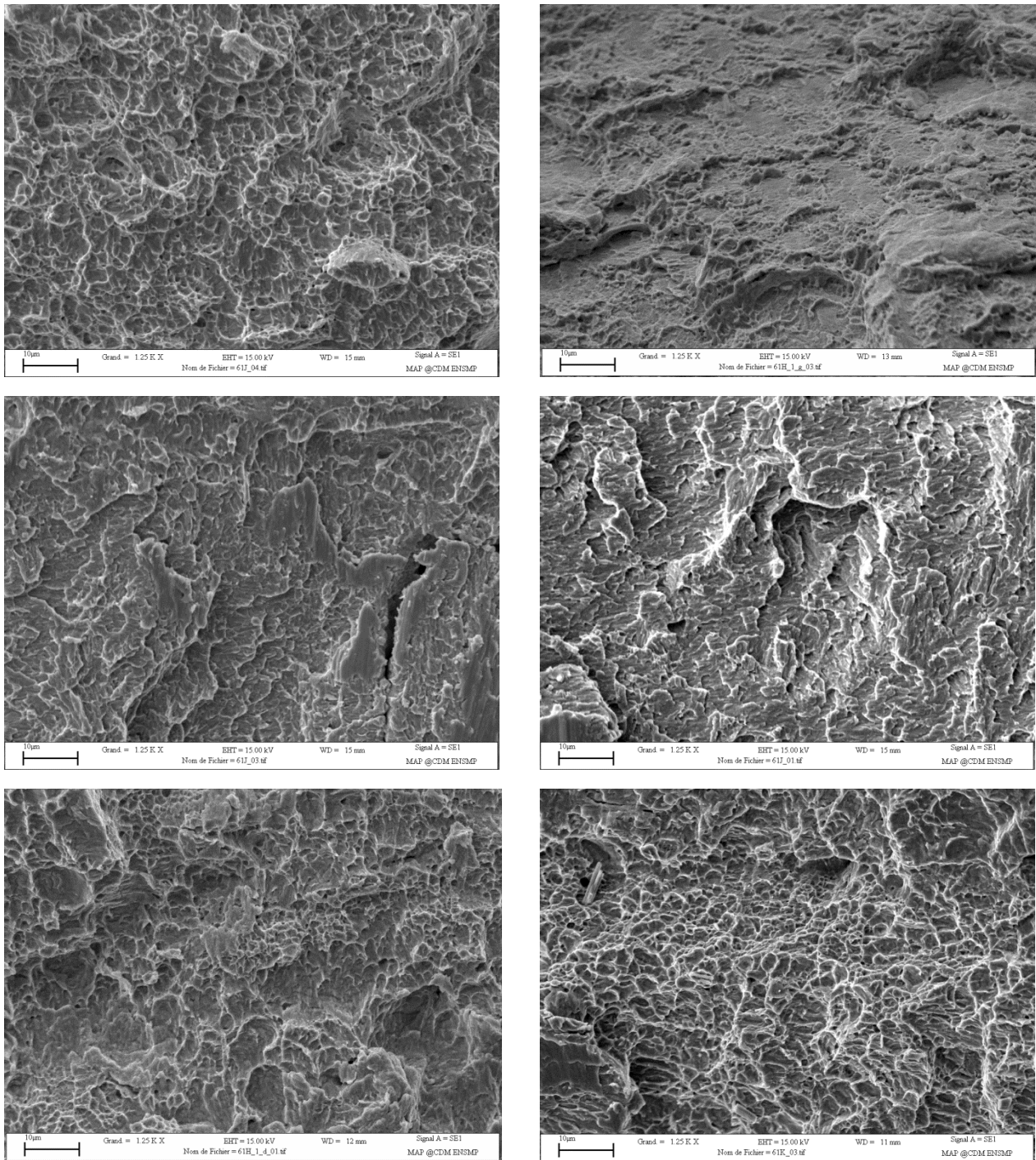
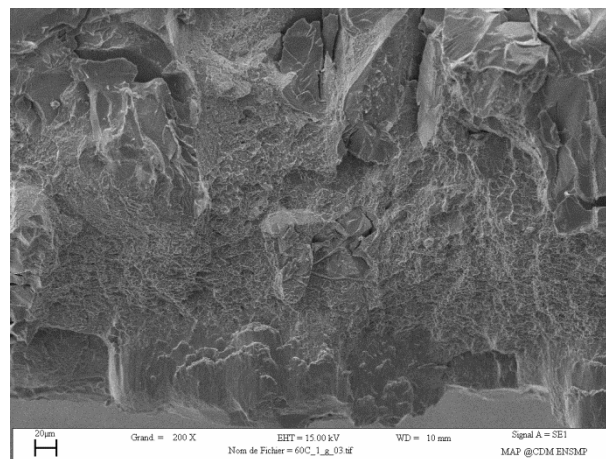
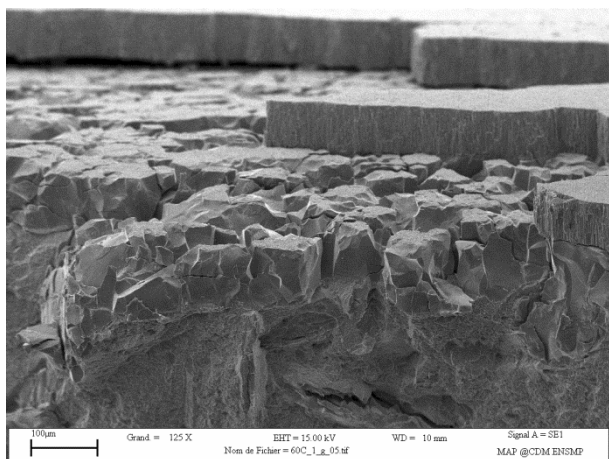
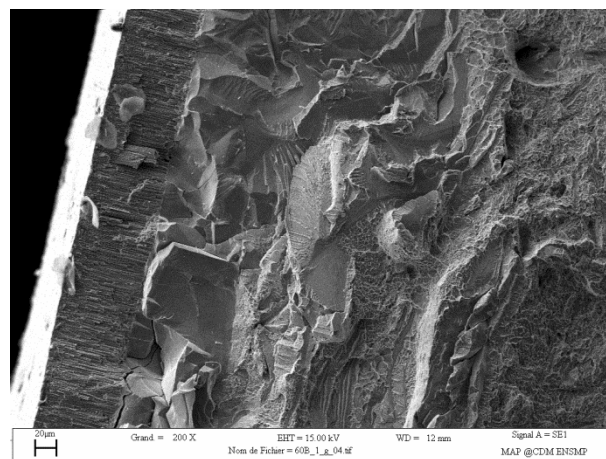
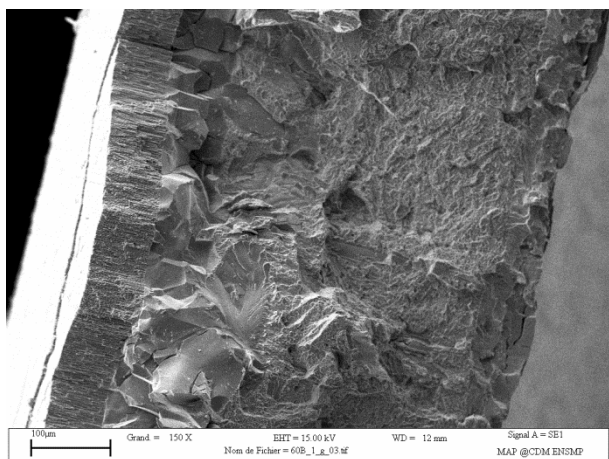
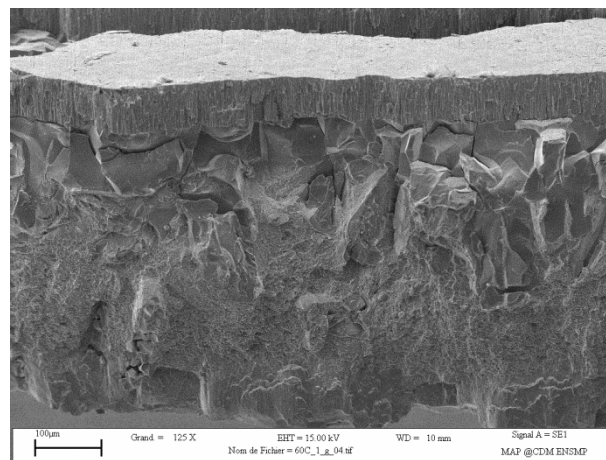
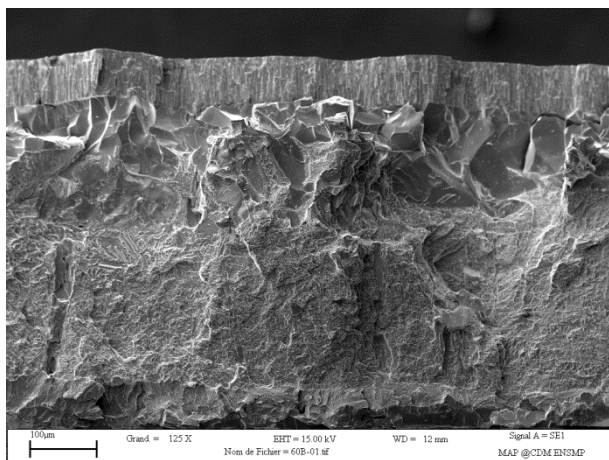


Figure 136 : Fractographies post-essais de compression d'anneaux réalisés sur gaine en Zy-4 oxydée 467s à 1100°C (6,5% ECR).

8.2. Gaines en Zy-4 oxydées 1349s à 1100°C (10% ECR)



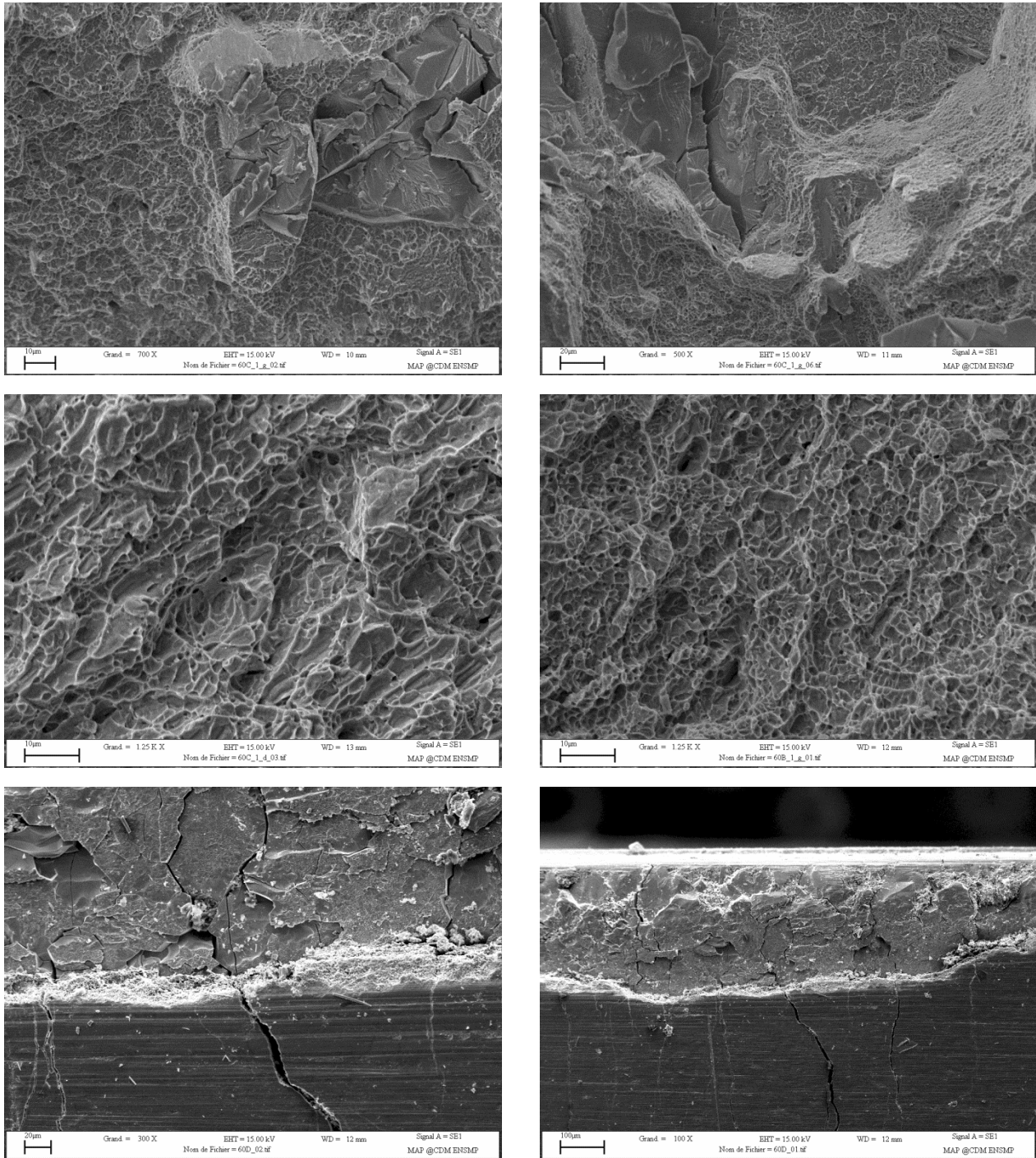
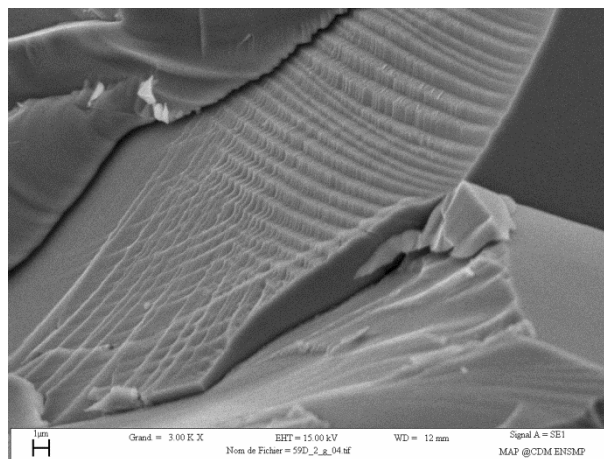
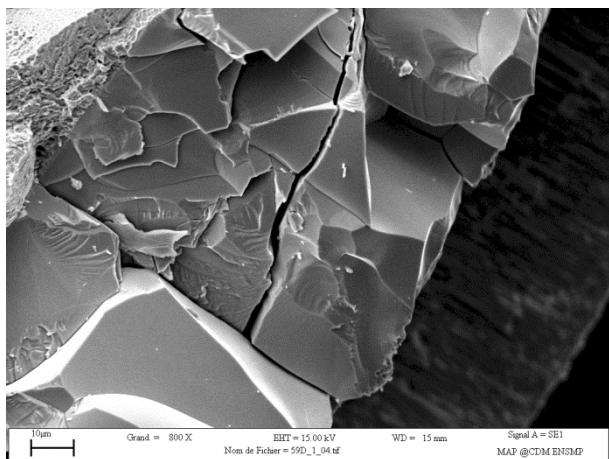
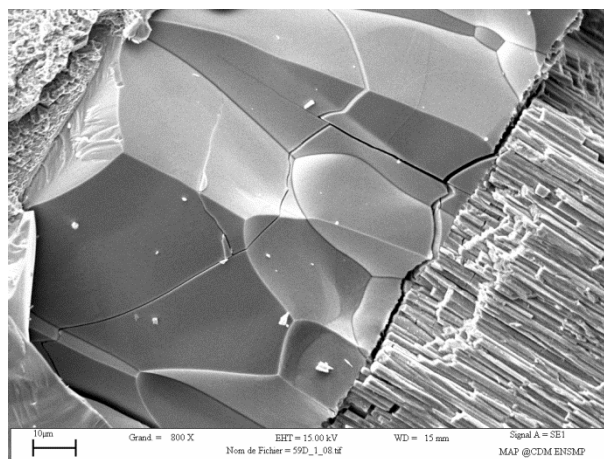
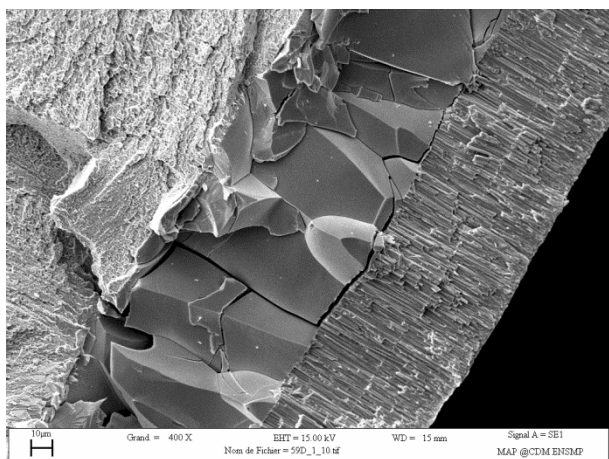
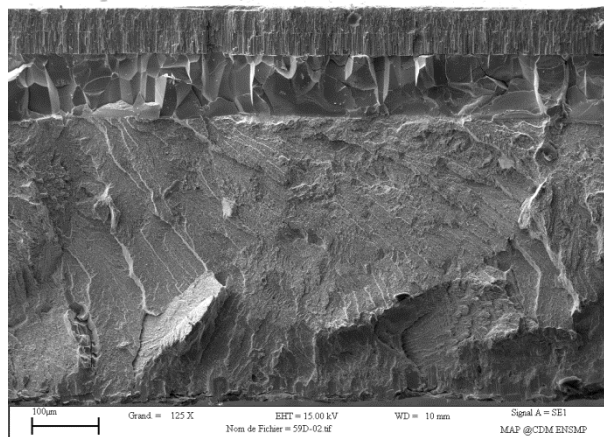
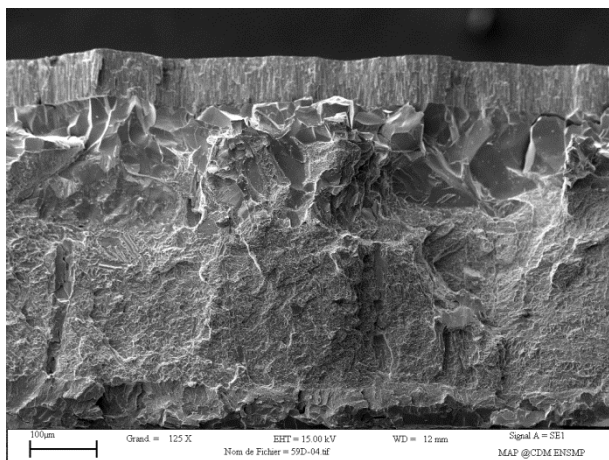


Figure 137 : Fractographies post-essais de compression d'anneaux réalisés sur gaine en Zy-4 oxydée 1349s à 1100°C (10,3% ECR).

8.3. Gaines en Zy-4 oxydées 520s à 1200°C (10% ECR)



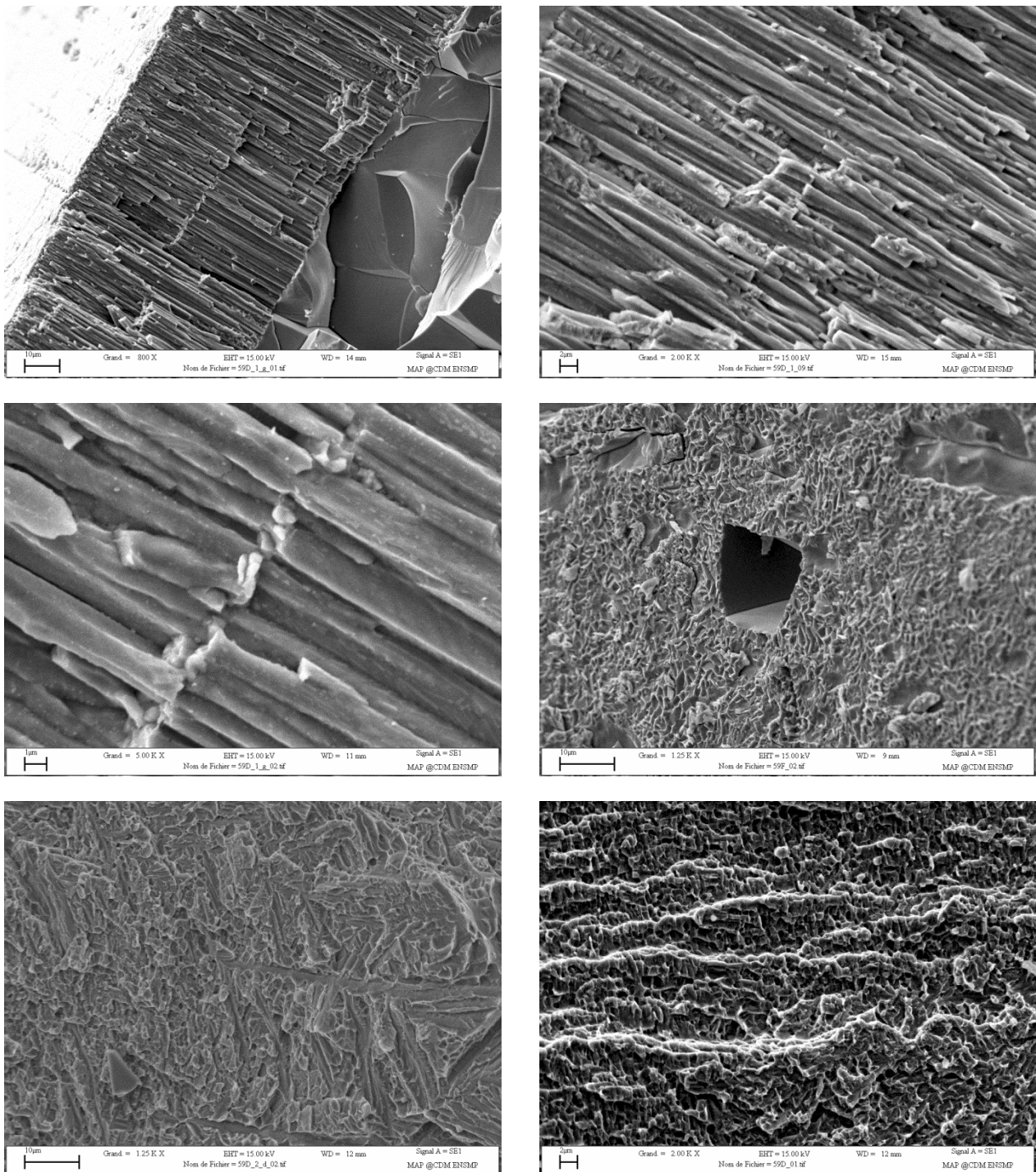


Figure 138 : Fractographies post-essais de compression d'anneaux réalisés sur gaine en Zy-4 oxydée 520s à 1200°C (10,3% ECR).

8.4. Gaines en Zy-4 oxydées 1492s à 1200°C (17% ECR)

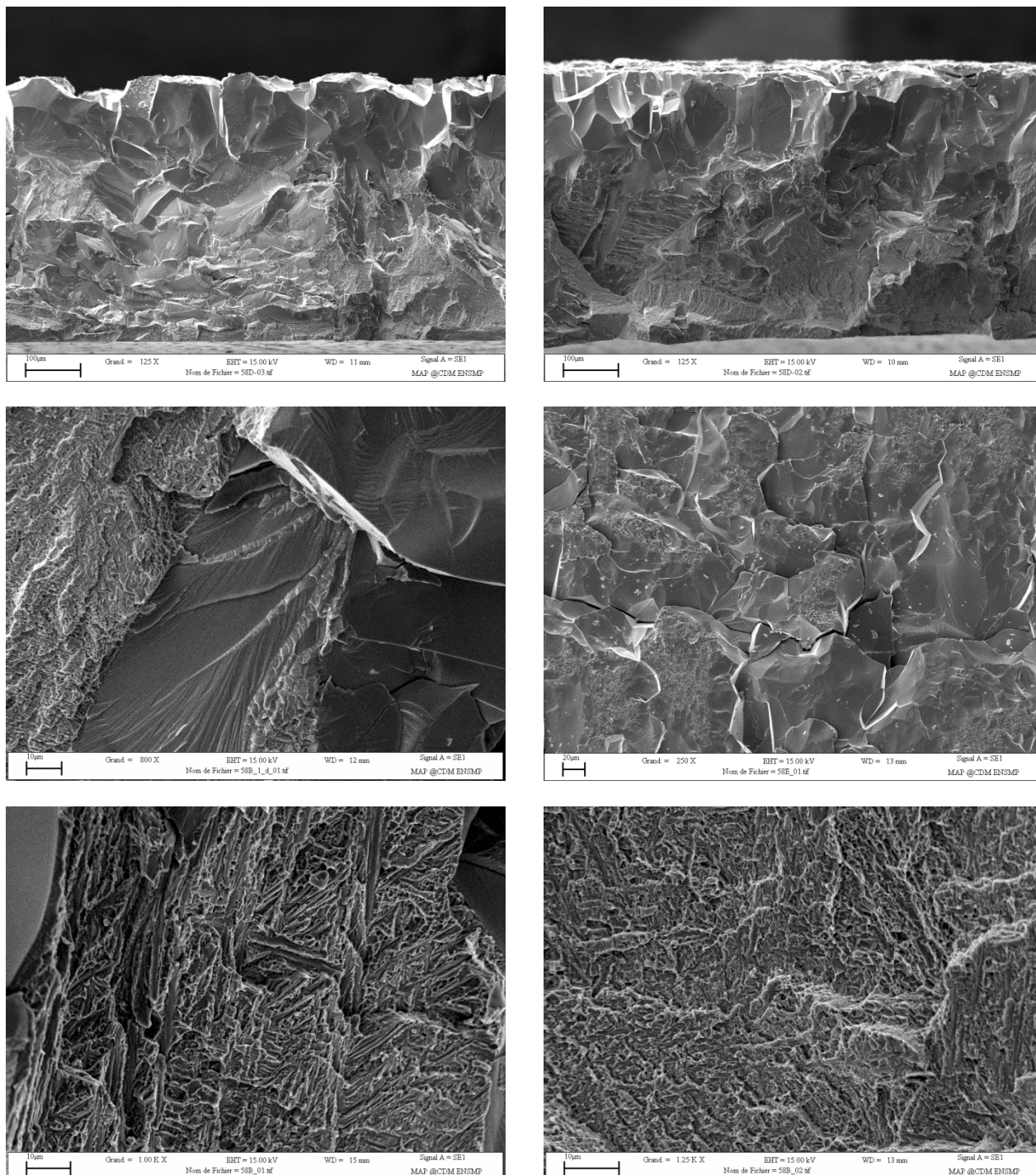


Figure 139 : Fractographies post-essais de compression d'anneaux réalisés sur gaine en Zy-4 oxydée 1492s à 1200°C (16,5% ECR).

Modélisation du comportement mécanique "post-trempe", après oxydation à haute température des gaines de combustible des réacteurs à eau pressurisée

RESUME : Le comportement des assemblages combustibles des Réacteurs Nucléaires à Eau Pressurisée (REP) doit être évalué en conditions de fonctionnement ainsi qu'en conditions accidentelles. Pendant la 2ème phase du scénario dit « d'Accident de Perte de Réfrigérant Primaire (APRP) », les gaines tubulaires des crayons combustibles en alliages de Zirconium subissent une oxydation à haute température (jusqu'à 1200°C), à partir de la face externe de la gaine, puis une trempe à l'eau lors du renoyage final du cœur du réacteur accidenté.

Après oxydation et trempe, la gaine comporte schématiquement trois couches : une première couche extérieure de zircone très riche en oxygène (ZrO_2) fragile à basse température, une deuxième couche de phase alpha stabilisée par l'oxygène ($\alpha(O)$) elle aussi fragile, et une troisième couche interne de phase dite « ex-beta » qui est la seule à pouvoir garder une certaine ductilité à basse température. Cependant, en cas de prise d'hydrogène due à la corrosion en service et/ou pendant le transitoire, l'hydrogène a tendance à se concentrer dans cette couche interne en induisant une fragilisation supplémentaire.

A l'issue d'un transitoire APRP et afin de caractériser le comportement résiduel de la gaine, les Essais de Compression d'Anneaux (ou Ring Compression Tests- RCT) sont utilisés pour évaluer les propriétés mécaniques « post trempe » de la gaine car ils sont simples à mettre en œuvre et également peu consommateurs de matière, ce qui est un atout pour d'éventuels essais comparatifs sur matériaux irradiés. Malheureusement, les courbes de force-déplacement ainsi obtenues, bien que très reproductibles, ont une évolution complexe, et sont sujettes à des interprétations diverses.

Dans cette thèse, nous proposons un scénario original de rupture des différentes couches de la gaine au cours d'un essai de compression d'anneaux et la modélisation associée. Cette approche intègre à la fois, l'évaluation des contraintes d'origine thermique résultant de la trempe après oxydation à haute température, l'influence de la variation de la teneur en oxygène dans les différentes couches sur leurs lois de comportement respectives, et l'endommagement progressif des différentes couches au cours de l'essai. Le scénario proposé s'appuie sur des essais interrompus, des observations fines des couches de zircone et d' $\alpha(O)$, des essais sur anneaux « monocouche ex-beta », et des lois de comportement obtenues sur matériaux modèles.

La modélisation EF obtenue rend bien compte des multiples incidents relevés sur les courbes de compression. Le scénario auquel nous aboutissons devrait permettre de lever les interrogations sur les modes de dépouillement macroscopiques de ces essais.

Cette étude propose finalement une évaluation préliminaire de l'impact de l'hydrogène (issu de la corrosion en service) sur le comportement mécanique post oxydation/trempe.

Mots clés : alliages de zirconium, éléments finis, compression d'anneaux, matériaux stratifiés, oxydation haute température, APRP.

Modeling of mechanical behavior of quenched zirconium-based nuclear fuel claddings, after a high temperature oxidation

ABSTRACT : During the second stage of Loss Of Coolant Accident (LOCA) in Pressurized Water Reactors (PWR) zirconium-based fuel claddings undergo a high temperature oxidation (up to 1200°C), then a water quench. After a single-side steam oxidation followed by a direct quench, the cladding is composed of three layers: an oxide (Zirconia) outer layer (formed at HT), always brittle at Room Temperature (RT), an intermediate oxygen stabilized alpha layer, always brittle at RT, called $\alpha(O)$, and an inner "prior-beta" layer, which is the only layer able to keep some significant Post Quench (PQ) ductility at RT. However, hydrogen absorbed because of service exposure or during the LOCA transient, concentrates in this layer and may leads to its embrittlement.

To estimate the PQ mechanical properties of these materials, Ring Compression Tests (RCT) are widely used because of their simplicity. Small sample size makes RCTs advantageous when a comparison with irradiated samples is required. Despite their good reproducibility, these tests are difficult to interpret as they often present two or more load drops on the engineering load-displacement curve. Laboratories disagree about their interpretation.

This study proposes an original fracture scenario for a stratified PQ cladding tested by RCT, and its associated FE model. Strong oxygen content gradient effect on layers mechanical properties is taken into account in the model. PQ thermal stresses resulting from water quench of HT oxidized cladding are investigated, as well as progressive damage of three layers during an RCT. The proposed scenario is based on interrupted RCT analysis, post- RCT sample's outer layers observation for damage evaluation, RCTs of prior-beta single-layer rings, and mechanical behavior of especially chemically adjusted samples.

The force displacement curves appearance is correctly reproduced using the obtained FE model. The proposed fracture scenario elucidates RCTs of quenched zirconium-based nuclear fuel claddings (after a high temperature oxidation) macroscopic interpretation.

Finally, this study presents a preliminary evaluation of the impact of hydrogen on the oxidized cladding's mechanical behavior.

Keywords : zirconium alloys, finite elements, ring compression tests, stratified materials, high temperature oxidation, LOCA.